

# Entwicklung eines UV-Lasertransmitters und Aufbau eines flugzeuggetragenen DIAL für Ozonmessungen in der Troposphäre

Von der Universität Bayreuth  
zur Erlangung des Grades eines  
Doktors der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)  
genehmigte Abhandlung

von

Alexander Meister

Geboren in Wiesbaden

1. Gutachter Prof. Dr. A. Seilmeier
2. Gutachter Prof. Dr. U. Schuhmann

Tag der Einreichung:	10.06.2005
Tag des Kolloquiums:	14.12.2005



## **Entwicklung eines UV-Lasertransmitters und Aufbau eines Flugzeug getragenen DIAL für Ozonmessungen in der Troposphäre**

### **Zusammenfassung**

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde ein flugzeuggetragenes DIAL-System mit einem optisch parametrischen Oszillator (OPO) als Lasertransmitter entwickelt, mit dem es möglich ist, die räumliche Ozonverteilung in der unteren Troposphäre zu bestimmen. Die räumliche Auflösung beträgt dabei bis zu 220 m vertikal und 600 m horizontal. Das System ist mit einem Stromverbrauch von typischerweise 1100 W und einer Gesamtmasse von 270 kg sehr kompakt, was für die Integration in ein einmotoriges Flugzeug wie die DLR Cessna 208 Grand Caravan notwendig ist.

Es wurde speziell für dieses System eine neue, über den Bereich von 281 bis 300 nm kontinuierlich durchstimmbare "all solid state" Laserlichtquelle auf Basis eines KTP OPO mit intracavity Summenfrequenzmischung (SFM) entwickelt. Die spektrale Breite im UV ist kleiner als  $4,5 \cdot 10^{-2}$  nm und die Divergenz kleiner als 0,8 mrad. Die Pumpquelle für den OPO ist ein blitzlampengepumpter Nd:YAG Laser mit Injection Seeding und einer Repetitionsrate von 10 Hz. Die durchschnittliche Pulsenergie beträgt 11 mJ wobei das gemessene Maximum bei etwa 14 mJ liegt. Die Vorteile gegenüber anderen Laseremittern liegen in seiner geringen Abmessung ( $20 \times 17 \times 10$  cm<sup>3</sup>), der Stabilität und der vergleichsweise hohen optischen Effizienz von 3,5 %.

Es wurden erste Bodenmessungen am DLR in Oberpfaffenhofen und zwei sehr erfolgreiche Flugzeugkampagnen im süddeutschen Raum und Österreich durchgeführt. Detektiert wurden dabei die elastische Rückstreuung bei 355 nm zur Aerosolüberwachung, sowie das zurückgestreute UV-Signal bei 287 und 296 nm für die Ozonmessung. Bei diesen Sondierungen hat das System sehr eindrucksvoll seine Zuverlässigkeit in Bezug auf Ausgangsleistung und Wellenlängenstabilität des OPO unter Beweis gestellt. Es hat ebenso demonstriert, dass damit großräumige zweidimensionale Schnitte der O<sub>3</sub>-Konzentration durch die Atmosphäre mit einem Gesamtfehler von deutlich unter 10 % gemessen werden können. Der statistische Fehler der Messungen beträgt dabei in einer Entfernung von 1,5 km unterhalb der Flughöhe etwa 4 % wobei der systematische Fehler mit kleiner 5,5 % berechnet wurde. Es konnte ebenfalls gezeigt werden, dass die während des Fluges gemessenen Ozonkonzentrationen mit den Werten von Bodenmessstationen sehr gut übereinstimmen.

Somit steht ein neues, im Vergleich zu den bisher existierenden Instrumenten erheblich kompakteres Messsystem mit deutlich verbesserter räumlicher Auflösung zur Verfügung. Dadurch wird es zu einer sehr guten Ergänzung für andere Messinstrumente, um aktuelle Fragen bezüglich der Troposphäre beantworten zu können.

## **Development of a UV laser transmitter and design of an airborne DIAL system for measurements of tropospheric ozone**

### **Abstract**

An airborne differential absorption lidar (DIAL) system, based on a tuneable optical parametric oscillator (OPO) as the lidar transmitter was developed to measure the 2-dimensional ozone distribution in the lower troposphere. Its typical resolution is up to 220 m in the vertical and 600 m in the horizontal direction, respectively. The power consumption is about 1 kW and the overall weight 270 kg.

An all solid state laser light source was developed using a KTP OPO with intra cavity sum frequency mixing (SFM). Its continuous tuneable spectral width reaches from 281 up to 300 nm and is well adapted to the requirements for ozone DIAL. The pump source for this system is an injection-seeded flashlamp pumped Nd:YAG laser operating at a repetition rate of 10 Hz. The spectral bandwidth in the UV is less than  $4,5 \cdot 10^{-2}$  nm and the divergence smaller than 0.8 mrad. The average pulse power is about 11 mJ whereas the maximum peak power is about 14 mJ. The system is very small in size (20x17x10 cm<sup>3</sup>), comprises high mechanical stability, and has a high optical conversion efficiency of 3.5 %.

Based on this light source the DIAL system named TropOLEX was developed. At first test measurements from the ground were carried out. Subsequently, the system was deployed on DLR's Cessna 208 Grand Caravan. Two field campaigns over the South of Germany and Austria were accomplished. During these flights the performance and reliability were successfully demonstrated. The elastic backscatter on 355 nm was monitored due to possible aerosol gradients while for the ozone measurement the backscatter on 287 and 296 nm was recorded. Furthermore, it could be demonstrated that the two dimensional ozone cross sections throughout the lower troposphere was recorded with an overall error of less than 10 %. In a distance of about 1.5 km the statistical error of the ozone concentration was determined to be less than 4 % and in a worst case estimation the systematic error was calculated to be less than 5.5 %. Comparison between in-situ measured ozone near the ground and the aircraft data showed a very good agreement.

With this instrument a new lidar system is now at disposal for atmospheric research, being much smaller in size and showing better range resolution than most comparable airborne ozone DIAL systems for tropospheric measurements. Therefore this remote sensing system shows great promise for complementing existing airborne instruments to tackle topical scientific problems in tropospheric research.

# Inhalt

<b>1. Einleitung .....</b>	<b>1</b>
<b>2. Ozonchemie und Streuung .....</b>	<b>7</b>
2.1 <i>Ozonchemie .....</i>	7
2.2 <i>Streuung in der Atmosphäre .....</i>	12
2.2.1    Rayleigh-Streuung .....	14
2.2.2    Mie-Streuung .....	15
<b>3. Differential Absorption Lidar (DIAL) .....</b>	<b>18</b>
<b>4. Messwellenlängen .....</b>	<b>29</b>
<b>5. Lasertransmitter.....</b>	<b>37</b>
5.1 <i>Optisch parametrische Verstärkung (OPA) .....</i>	38
5.2 <i>Optisch parametrischer Oszillator (OPO) .....</i>	46
5.3 <i>OPO-Konfiguration .....</i>	49
5.4 <i>OPO-Kristall KTP .....</i>	53
5.5 <i>SFM-Kristall BBO .....</i>	56
5.6 <i>OPO-Design .....</i>	58
5.6.1    100 Hz Taktfrequenz.....	59
5.6.2    10 Hz Taktfrequenz.....	62
5.7 <i>Wellenlängensteuerung .....</i>	70
<b>6. Das TropOLEX System .....</b>	<b>71</b>
<b>7. Messungen.....</b>	<b>79</b>
7.1 <i>Ozonmessungen vom Boden .....</i>	80
7.2 <i>Flugzeugplattform Cessna 208.....</i>	84
7.3 <i>Flugzeugmesskampagnen .....</i>	86
7.4 <i>Vergleichsmessungen.....</i>	97
<b>8. Fehlerdiskussion .....</b>	<b>101</b>

8.1	<i>Systematische Fehler</i> .....	101
8.1.1	Wellenlängengenauigkeit.....	101
8.1.2	Temperatureinfluss .....	104
8.1.3	Querinterferenzen .....	105
8.1.4	Aerosoleinfluss .....	106
8.2	<i>Statistischer Fehler</i> .....	108
<b>9.</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick .....</b>	<b>112</b>
<b>10.</b>	<b>Summary.....</b>	<b>114</b>
<b>11.</b>	<b>Literaturverzeichnis .....</b>	<b>116</b>
<b>12.</b>	<b>Danksagung .....</b>	<b>125</b>

### 1. Einleitung

Neben Wasserdampf, Kohlendioxid und Methan ist Ozon eines der klimarelevanten Treibhausgase in der Atmosphäre. Bedingt durch sein stark oxidierendes Verhalten, wirkt es in höheren Konzentrationen aber auch toxisch auf die Biosphäre.

Bei der Bildung von Ozon in der Troposphäre spielen photochemische Reaktionen, in Verbindung mit Stickoxiden aus Abgasen und flüchtigen Kohlenwasserstoffen als Vorläufersubstanzen, eine wichtige Rolle. Diese chemischen Vorläufersubstanzen sind in der Atmosphäre zum Teil über mehrere Tage stabil und werden mit der vorherrschenden Luftströmung transportiert. Daher ist der Ozongehalt in chemisch stark belasteten Regionen häufig sogar geringer als in weniger stark belasteten. Das primär bei Verbrennungen ausgestoßene Stickstoffmonoxid wird dort unter Ozonabbau zu Stickstoffdioxid oxidiert. In den eher ländlichen Gegenden akkumulieren dagegen Stoffe, die die Produktion von Ozon fördern, weshalb dort erhöhte Ozonkonzentrationen auftreten. Um die Transportwege von belasteten Luftmassen, wie z.B. industrielle Abgasfahnen, welche zum Teil recht große Mengen solcher Vorläufersubstanzen enthalten, nachzuvollziehen, eignet sich Ozon sehr gut als Tracersubstanz.

Erste Ozonmessungen wurden bereits 1876 in Frankreich durchgeführt, wobei die durchschnittlich gemessene Konzentration in der unbelasteten Troposphäre zu dieser Zeit noch etwa 10 nmol/mol betrug. Seither hat sich, auf Grund von anthropogenen Einflüssen, die durchschnittliche Konzentration um mehr als das vier- bis fünffache erhöht und liegt heute im Mittel etwa zwischen 40 und 50 nmol/mol (Abbildung 1-1). Auch hat sich das jahreszeitliche Maximum in der Zwischenzeit vom Frühjahr in den Sommer hinein verlagert [Volz und Kley 1988, Volz und Geiss 1989]. In Abbildung 1-1 ist die Schichtung der unteren Atmosphäre schematisch dargestellt. Den untersten Bereich der Troposphäre bildet die Mischungs- oder auch Grenzschicht. Daran schließt sich die freie Troposphäre an, welche an der Tropopause endet. Innerhalb der Troposphäre nimmt die Temperatur stetig ab, wohingegen in der Tropopause Isothermie herrscht und die Temperatur in der Stratosphäre wieder zunimmt. Innerhalb der Mischungsschicht beträgt die natürliche Ozonkonzentration etwa 20 – 45 nmol/mol. Mit steigender Höhe nimmt diese natürliche Konzentration noch weiter zu und erreicht ein Maximum in der Stratosphäre – die sog. Ozonschicht.

Das wichtigste Quellgebiet für Ozon ist die tropische Stratosphäre [Danielsen 1968, Oberreuter 1992, Russel et al. 1993], wo es fortwährend durch Photosynthese, d.h. durch die photolytische Spaltung von molekularem Sauerstoff und anschließender Synthese produziert wird. Durch die Luftströmungen wird das so entstandene Ozon transportiert und dabei auch teilweise wieder zersetzt. Die Brewer-Dobson Zirkulation sorgt insbesondere in der jeweiligen Winterhemisphäre für einen polwärts und letztendlich abwärts gerichteten Transport. Dadurch wird das Ozon in der gesamten Atmosphäre verteilt und es bilden sich je nach geografischer Region und Jahreszeit

typische Verteilungsmuster aus. Auffallend ist dabei eine Akkumulation der Ozonkonzentration in der Stratosphäre rund um den Globus in einer Höhe von etwa 20 km an den Polen und bis zu 35 km am Äquator (Druck- bzw. Dichtemaximum in ca. 20 km). Ein Großteil der solaren UV-Strahlung wird in dieser Schicht absorbiert, wodurch eine Entwicklung von Leben auf der Erde außerhalb der Ozeane erst möglich wurde. Durch die Abnahme der  $O_3$ -Konzentration in dieser Schicht hat sich die UV-Strahlung in den letzten 30 Jahren im Februar um etwa 15 % und allgemein im Sommer um 5 % erhöht [Kins 1999]. Für die Energie- und Strahlungsbilanz bedeutet das aber auch, dass durch eine Abnahme der Ozonkonzentration in der Stratosphäre dort tendenziell eine Abkühlung und im Gegenzug dazu eine Erwärmung der bodennahen Luftmassen erfolgt. Für die Zeit von 1972 bis 1989 konnte eine Abnahme der Temperatur zwischen  $0,5^\circ$  in der unteren und  $2^\circ$  in der oberen Stratosphäre pro Dekade beobachtet werden. Dem steht eine Erwärmung der Troposphäre von  $0,1^\circ$  bis  $0,2^\circ$  pro Dekade gegenüber [Angell 1991]. Diese Temperaturänderungen sind aber nicht ausschließlich auf die  $O_3$  Variation zurückzuführen.

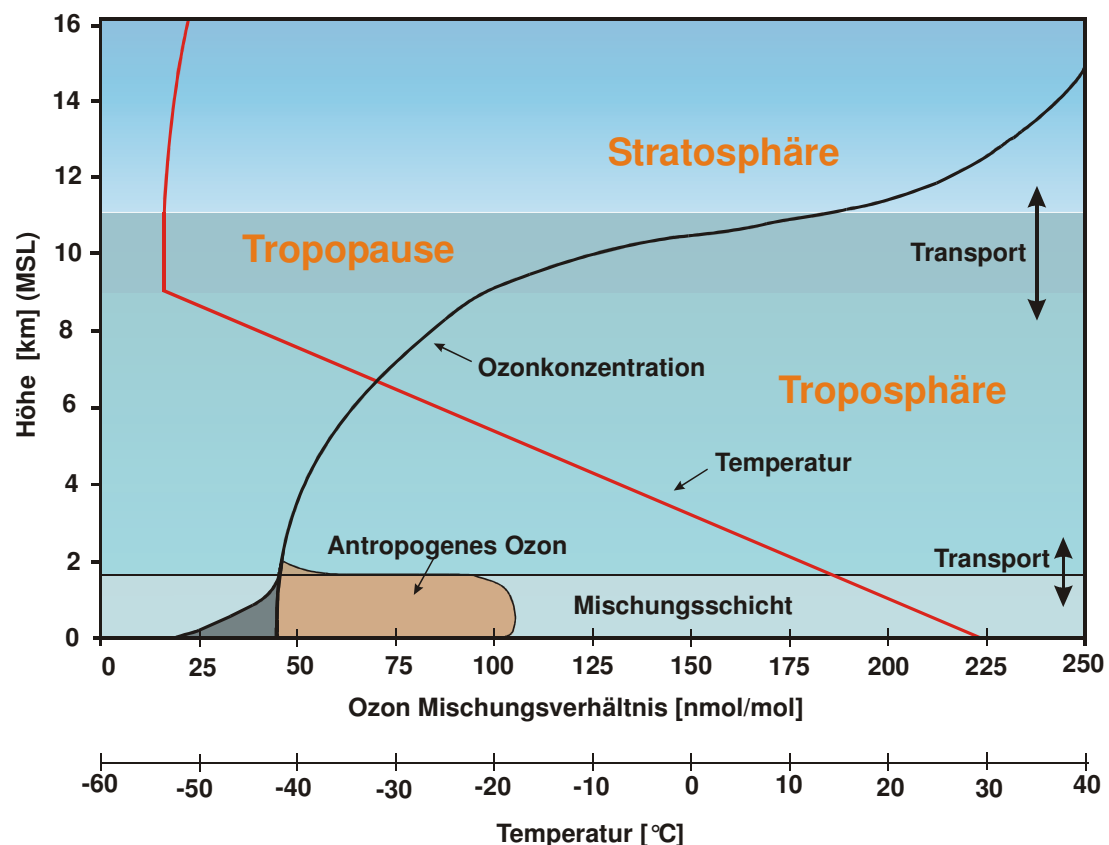


Abbildung 1-1: Typischer Verlauf der Temperatur und Ozonkonzentration mit der Höhe bezogen auf MSL (Mean Sea Level) [nach Fiedler 1982]

Etwa 90 % des atmosphärischen Ozons befinden sich in der Stratosphäre, in welcher auf eine Million Luftmoleküle durchschnittlich fünf Ozonmoleküle kommen, d.h. die Konzentration beträgt  $5 \mu\text{mol/mol}$ . Würde das in der gesamten Atmosphäre verteilte



Ozon in einer Schicht reinen Ozons an der Erdoberfläche unter Normalbedingungen konzentriert, hätte diese Schicht eine Dicke von kaum mehr als 3 mm.

Um ein vollständiges Klimamodell aufzustellen, ist es unter anderem auch notwendig, die Entwicklung der Ozonverteilung vorhersagen zu können, weshalb die Bildungs- und Verteilungsmechanismen wiederum simuliert werden müssen. Wegen der hohen Komplexität der verschiedenen Ozonbildungsmechanismen ist dies allerdings recht aufwändig und erschwert somit eine zuverlässige Vorhersage. Um möglichst viele Daten über auftretende Ozonkonzentrationen zu sammeln, existiert inzwischen ein großes Netzwerk an Bodenmessstationen, welches durch regelmäßige Sondenaufstiege ergänzt wird. Dadurch wird das Verständnis für die unterschiedlichen Mechanismen erhöht und die vorhandenen Modelle können getestet und verbessert werden. Allerdings wären hier zeitlich dichtere und wenn möglich mehrdimensionale Messungen notwendig, da somit die Variabilität auch in der Höhe besser erfasst und modelliert werden könnte. Eine "chemische Wettervorhersage", bei der u. a. die  $O_3$ -Konzentration prognostiziert würde, könnte somit deutlich verbessert werden.

Für die Messung von Ozon werden zum einen in-situ Messungen vorgenommen und zum anderen kommen verschiedene Methoden der Fernerkundung zum Einsatz. Die meisten der gängigen in-situ Messverfahren beruhen auf elektrochemischen Reaktionen, wie sie in Brewer-Mast- und ECC-Sonden Verwendung finden. Das in der Atmosphäre vorhandene Ozon reagiert dabei chemisch z. B. mit einer Kaliumjodidlösung und verändert damit die Zusammensetzung dieser Lösung. Dies erzeugt einen messbaren Strom, proportional zum Partialdruck des Ozons [Komhyr 1969]. In-situ Messungen besitzen generell eine sehr hohe Genauigkeit, sie sind aber in der räumlichen Auflösung sehr eingeschränkt, da sie entweder punktförmig oder eindimensional mit flugzeuggetragenen Systemen oder Ballonsonden, messen.

Einen ganz anderen Ansatz der Detektion bietet das optische Absorptionsspektrum von Ozon, welches bei UV-Photometern und bei der Fernerkundung durch Satellitenmessungen ausgenutzt wird. Die auf Satelliten zur Bestimmung des Ozongehalts zum Einsatz kommenden Systeme erzielen zwar eine globale Abdeckung, allerdings eignen sie sich nur bedingt für Messungen in der Troposphäre. Wenn die Messungen bis in die Troposphäre vordringen, kann meist nur der Säulengehalt gemessen werden, bzw. besitzen sie eine sehr grobe Auflösung von mehreren Kilometern (Tabelle 1-1). Die eingesetzten optischen Systeme sind meist passive Systeme ohne eigene Lichtquelle, d.h. sie nutzen z. B. die Sonnen-(solar occlusion) bzw. Sternenstrahlung (stellar occlusion) aus. Dabei werden unterschiedliche Blickwinkel auf die Erde ausgenutzt. Zum einen senkrecht zur Erde (nadir) und zum anderen schräg durch die Atmosphäre hindurch (limb).

Der große Vorteil der Fernerkundung gegenüber in-situ Messungen besteht in dem erheblich größeren räumlichen Auflösungsvermögen. Mit Hilfe der Fernerkundung lassen sich ein- bzw. zweidimensional orts- und zeitaufgelöste Messungen vom Boden bis hinauf in die Stratosphäre durchführen, wobei viele unterschiedliche Substanzen nachgewiesen werden können.

Instrumenten-name	Technik / Blickwinkel	spektraler Bereich	Höhenbereich der O <sub>3</sub> Bestimmung	Appr. vertikale Auflösung (km)
BUV	nadir	UV	25-55 km	8-15
LRIR	limb	IR	20-60 km	4
SBUV	nadir	UV	25-55 km	8-15
LIMS	limb	IR	20-65 km	4
SAGE I	sol. occ.	vis-IR	10-55 km	1 (5 über 45 km)
SAGE II	sol. occ.	vis-IR	10-65 km	1 (5 über 45 km)
UVS	limb	UV	48-70 km	3,5
NIRS	limb	near-IR	50-90 km	4
UVSP	sol. occ.	UV	50-70 km	0.01-2
SBUV-2	nadir	UV	25-55 km	8-15
MLS	limb	microwave	20-56 km	>4
CLAES	limb	IR	30-56 km(*)	>2,5
Haloe	sol. occ.	IR	20-64 km	>1,5
ISAMS		IR	30-60 km(*)	>3
POAM	sol. occ.	UV-vis	10-60 km	1
ILAS	limb	IR	10-60 km	
GOME	nadir	UV-vis	0-60 km	5-8 (über 10 km)
MUVIS		UV-vis, near-IR	20-70 km	20-70
SMR	limb	sub-mm	20-95 km	2,5
Sciamachy	nadir, limb	UV-vis	0-60 km	3 (über 10 km)
MIPAS	limb	IR	15-85 km	3
GOMOS	stel. occ.	UV-vis	15-90 km	

**Tabelle 1-1: Tabelle einiger satellitengestützter Ozonmesssysteme. Stel. occ. und sol. occ. steht für die genutzte Strahlung (stellar occlusion oder solar occlusion) und limb und nadir für den Blickwinkel (schräg oder senkrecht) auf die Erde. Der Höhenbereich gibt die Höhe an, in welcher Ozon gemessen werden kann.**

Das Lidar-Verfahren, aus dem englischen **L**ight **D**etection **A**nd **R**anging, ist ein Analogon des bekannten Radars im optischen Spektralbereich. Bei Lidar-Systemen kommen Wellenlängen im Bereich von nm bis  $\mu\text{m}$  zum Einsatz, d.h. es werden Lichtwellen ausgesandt, wohingegen das Radar mit Wellenlängen von wenigen mm bis zu mehreren m arbeitet. Dementsprechend werden beim Lidar an Stelle von Antennen Teleskope zum Empfang des rückgestreuten Signals eingesetzt, mit denen die zurückgestreuten Photonen eingefangen und detektiert werden. Aus der Laufzeit der Photonen wird dann der Abstand zum streuenden Medium bestimmt.

Wie in den VDI-Richtlinien [VDI 4210] beschrieben, ist das Lidar-Verfahren für die Sondierung der Atmosphäre und für Messungen verschiedener meteorologischer Parameter wie z.B. Feuchte und Windgeschwindigkeit eine seit vielen Jahren bewährte Methode der Fernerkundung. Insbesondere hat sich das DIAL (**D**ifferential **A**bsorption **L**idar), ein erweitertes Lidar-Verfahren, zur orts aufgelösten Fernerkundung von Spurenstoffe als sehr effektiv und zuverlässig erwiesen [Grant and Hake 1975, Uchino and Maeda 1978, Godin and Mégie 1989, Mégie and Ancellet 1985, Papayannis and Ancellet 1990, VDI 4210]. In den vergangenen Jahren wurden Systeme realisiert, mit denen unter anderem organische Verbindungen (BTX-

Aromaten - Benzol mit Toluol und Xylol), Phosgen, Schadstoffe wie HCl, SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub> und Spurengase wie H<sub>2</sub>O, CH<sub>4</sub> oder O<sub>3</sub> detektiert wurden [Klein und Werner 1993].

Das DIAL-Verfahren stellt dabei prinzipiell ein Lidar mit zwei unterschiedlichen Wellenlängen dar. Dabei werden diese beim Durchgang durch die Atmosphäre unterschiedlich stark von dem zu bestimmenden Spurengas absorbiert. Aus der Differenz dieser beiden Messungen lässt sich die Konzentration des gesuchten Gases bestimmen (siehe Kapitel 3).

DIAL-Systeme sind in erster Linie eindimensional messende Geräte. Für die Aufnahme von großräumigen, zweidimensionalen Schnitten durch die Atmosphäre werden stationär aufgebaute Systeme mit Scannern versehen oder die Systeme werden auf mobilen Plattformen wie LKWs, Schiffen, Flugzeugen oder Satelliten installiert.

Ziel dieser Arbeit war es, ein flugzeuggetragenes Ozon-DIAL für zweidimensionale Schnitte durch die untere Troposphäre zu entwickeln und aufzubauen. Um das System in einem verhältnismäßig kleinen und somit auch kostengünstigen Flugzeug betreiben zu können, wurde besonderes Augenmerk auf die Größe und den Energieverbrauch gelegt. Um jederzeit eine für die Bestimmung der Ozonkonzentration best möglich angepasste Wellenlängenkombination zur Verfügung zu haben, sollte der spektrale Durchstimmbereich der Laserlichtquelle auch möglichst breit sein.

Wie von einigen Autoren [Proffitt M.H 1999, Pelon J. 1982] bereits beschrieben, ist die flexible Wahl der Messwellenlängen notwendig, da sie so der Molekülextinktion des entsprechenden Spurengases und den auftretenden Konzentrationen angepasst werden kann. Die wellenlängenabhängige optische Dicke kann somit angepasst werden, womit der statistische Fehler deutlich verringert wird. Hinzu kommt, dass die Querempfindlichkeit zu anderen Spurengasen, wie z.B. Schwefeldioxid SO<sub>2</sub> minimiert werden kann.

Ozon absorbiert hauptsächlich im UV Bereich, in der sog. Hartley Bande von 220 bis 310 nm, in der auch der Messbereich für die optische Fernerkundung von Ozon angesiedelt ist. Da die Wellenlänge flexibel sein soll und einige Einschränkungen bezüglich der Größe des Laseremitters bestehen, konnte nicht auf herkömmliche, handelsübliche Lasersysteme zurückgegriffen werden. Speziell für diesen Zweck musste eine kontinuierlich durchstimbare, effiziente Laserlichtquelle entwickelt werden. Neben der Laserentwicklung gehörten auch der DIAL-Aufbau sowie die Flugzeugintegration in eine Cessna 208 Grand Caravan, erste DIAL-Messungen und deren Auswertung zu den Zielen dieser Arbeit.

Vor Beginn der hier beschriebenen Arbeit operierten weltweit drei flugzeuggetragene DIAL-Systeme für troposphärische Ozonmessungen. Das UV-DIAL [Browell et al. 1989, 1996] der NASA, das 'airborne ozone UV-DIAL' der NOAA (National Oceanic & Atmospheric Administration) und das ALTO (Airborne Lidar for Tropospheric Ozone) der CNRS (Centre National de la Recherche Scientifique).

Das größte und auch zugleich leistungsfähigste System, ist das von der NASA betriebene UV-DIAL. Herzstück dieses 1,8 t schweren Systems sind zwei Nd:YAG gepumpte Farbstofflaser, wodurch das System spektral durchstimmbar ist. Als Plattform dient meist eine DC-8 der NASA. Das System misst gleichzeitig nach oben und unten, wobei der entstehende Zwischenraum durch in-situ Messungen des Flugzeuges ergänzt wird. Die Auflösung des Ozon-DIAL beträgt 300 m vertikal und 5

Minuten (~36 km) horizontal. Sowohl das 'airborne ozone UV-DIAL' der NOAA als auch das ALTO der CNRS sind spektral nicht durchstimmbar. Die Durchstimmbarkeit der Wellenlängen ist zwar für die Messung von Vorteil, aber eine festfrequente Lichtquelle ist einfacher zu realisieren. Das ALTO nutzt zur Ozonmessung, abhängig von der Entfernung, drei unterschiedliche Wellenlängen, womit ein Auflösungsvermögen von 10 km horizontal und zwischen 0,25 km und 1 km vertikal erzielt wird [Ancellet and Ravetta 1998]. Das System der NOAA basiert auf einem 20 Hz Krypton Fluorid-Laser mit Raman shifting, wodurch fünf verschiedenen Messwellenlängen zur Verfügung stehen [Alvarez et al. 1998]. Ziel der Arbeit war es hier, eine deutliche Verbesserung der örtlichen Auflösung gegenüber den bestehenden Systemen zu erreichen bei gleichzeitig geringerem Gewicht und somit auch erheblich geringeren Kosten.

Der Aufbau der Arbeit gliedert sich wie folgt. In Kapitel 2 werden die Ozonkreisläufe und Streuung an Molekülen und Aerosolen in der Atmosphäre beschrieben. In Kapitel 3 wird das Lidar und DIAL Verfahren erläutert und im darauf folgenden Abschnitt die Auswahl der Messwellenlängen für troposphärische Ozonmessungen diskutiert. Die Entwicklung und der Aufbau des für diese Messungen notwendigen Lasertransmitters wird in Kapitel 5 beschrieben und in Kapitel 6 das vollständige DIAL-System dargestellt. In Kapitel 7 werden dann die Messungen präsentiert. Dieser Abschnitt enthält sowohl die DIAL-Messungen vom Boden nach oben in die Atmosphäre als auch die Präsentation der Flugzeugmessungen. Anschließend werden die Fehlerquellen diskutiert und in Kapitel 9 folgt eine Zusammenfassung der Arbeit.

## 2. Ozonchemie und Streuung

Der wachsende Einfluss anthropogener Emissionen auf die chemische Zusammensetzung der Luft und deren mögliche Auswirkungen auf das Klima [Charlson und Heintzenberg 1994], wurde in den letzten Jahrzehnten zum Anlass genommen, die vielseitigen Wechselwirkungen von Spurengasen und Partikeln in der Atmosphäre systematisch zu untersuchen. Dazu wurden an vielen Standorten Langzeitmessungen wichtiger atmosphärischer Spurengase wie etwa Ozon  $O_3$ , Kohlendioxid  $CO_2$ , Stickstoffdioxid  $NO_2$  und anderer Gase durchgeführt.

In diesem Kapitel sollen die verschiedenen Ozonquellen und –senken sowie einige der grundlegenden chemischen Reaktionen in der Atmosphäre in Bezug auf Ozon näher erläutert werden. Darüber hinaus soll ein Einblick in die Grundzüge optischer Streuprozesse in der Atmosphäre gegeben werden, da diese die Basis der Fernerkundung mittels Licht darstellen.

### 2.1 Ozonchemie

Der globale Ozonhaushalt in der Troposphäre wird maßgeblich durch die Hintergrundkonzentration von  $NO_x$  gesteuert [Crutzen et al. 1990, Kleinmann 1994], wobei  $NO_x$  noch zusätzlich an der Bildung der Radikale OH und  $NO_3$  beteiligt ist, durch welche der Abbau atmosphärischer Spurenstoffe nahezu ausschließlich eingeleitet wird. In der Stratosphäre spielt Ozon eine wichtige Rolle als UV-Absorber, daneben ist es aber auch in der Troposphäre von großer Bedeutung. Einerseits schädigt es durch seine stark oxidierende Wirkung Tiere und Pflanzen, andererseits ist es die Hauptquelle atmosphärischer OH-Radikale, welche den Abbau vieler Substanzen natürlicher und anthropogener Herkunft einleiten. Nicht zuletzt ist Ozon mit einem Anteil von 7 % [Kondratyev und Moskalenko 1984] nach Wasserdampf (62 %) und Kohlendioxid (22 %), eines der wichtigsten natürlichen Treibhausgase. Zu dem natürlichen Treibhauseffekt kommt durch anthropogene Emissionen noch ein künstlicher Treibhauseffekt hinzu, wobei  $CO_2$  mit ca. 50 % den stärksten Einfluss auf diesen vom Menschen gemachten Zusatz hat, gefolgt von FCKW (22 %),  $CH_4$  (13 %) und  $O_3$  (7 %).

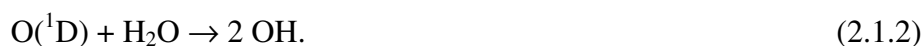
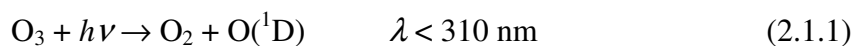
In der Troposphäre sind die chemischen Prozesse von freien Radikalen und Ozon eng miteinander verknüpft. In den letzten Jahren sind insbesondere zwei Aspekte des troposphärischen Stickoxidkreislaufs und damit auch des Ozons in den Vordergrund getreten. Zum einen treten schon seit längerer Zeit, in starken sommerlichen Strahlungsperioden, im Bereich von industriellen Ballungsräumen hohe Konzentrationen photochemisch produzierten Ozons auf (sog. „Los Angeles Smog“).

Die Ursache liegt hier hauptsächlich in den verstärkten Emissionen von Ozonvorläufersubstanzen wie Kohlenwasserstoffen (KW) und Stickoxiden ( $\text{NO}_x$ ) [Olszyna et al. 1994, Sillman et al. 1993]. Zum anderen hat man erkannt, dass heterogene Verlustprozesse einen großen Einfluss auf die Fähigkeit der nächtlichen Troposphäre haben, Spurenstoffe zu oxidieren und somit aus der Atmosphäre zu entfernen. Das bedeutet aber, dass chemische Umsätze sich quantitativ vielfach nicht allein durch homogene Gasphasenreaktionen beschreiben lassen, sondern eben auch auf heterogene Prozesse zurückzuführen sind [Staehelin und Hoigné 1982, Ehhalt und Drummond 1982, Platt 1986, Lammel und Perner 1988, Faust 1994]. Ein Beispiel dafür ist die Reaktion des  $\text{NO}_3$ -Radikals in feuchten Seesalzpartikeln mit  $\text{Cl}^-$ -Ionen, welches in der nächtlichen Troposphäre die Oxidation vieler Spurengase einleitet [Zetzsch und Behnke 1993].

Die Quellen für Stickoxide sind recht vielfältig, wobei der stratosphärische Eintrag von  $\text{NO}_x$  und die Oxidation von Ammoniak  $\text{NH}_3$  nur einen geringen Anteil dazu beitragen [Levy et al. 1985, Finnlayson-Pitts 1986]. Verbrennungsprozesse, Blitze [Ehhalt et al. 1992, Wayne 1991] und biogene Produktion durch Bakterien [Stocker et al. 1993, Smith et al. 1994] sind die Hauptquellen troposphärischer Stickoxide. Das Verhältnis der Stickoxide  $\text{NO}$  und  $\text{NO}_2$  beträgt bei der Verbrennung fossiler Energieträger oder Biomasse etwa  $[\text{NO}]/[\text{NO}_2] \approx 20:1$ . Hinzu kommt noch eine geringe Menge an salpetriger Säure  $\text{HNO}_2$  die dabei entsteht [Kessler 1984].

Nach heutiger Erkenntnis stammt die Hälfte des in der Troposphäre vorhandenen Ozons aus stratosphärischen Einträgen, wohingegen die andere Hälfte durch verschiedene chemische Prozesse in der Troposphäre gebildet wird, was aber, je nach regionaler Belastung, sehr stark schwanken kann. Die mittlere Anzahl der Ozonmoleküle in der Troposphäre beträgt etwa  $1 \cdot 10^{11} - 5 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ , wobei die Schwankungen aber insbesondere in der unteren Troposphäre, also innerhalb der planetaren Grenzschicht in der sog. Mischungsschicht, örtlich und zeitlich sehr erheblich sind. Nur etwa 10 % des gesamten atmosphärischen Ozons befindet sich in der Troposphäre, aber da es an vielen chemischen Prozessen beteiligt ist, hat Ozon dennoch einen großen Einfluss auf die Zusammensetzung der Troposphäre.

In einem spektralen Bereich von  $\lambda < 310 \text{ nm}$  wird die solare Strahlung von Ozon absorbiert und dieses dadurch in angeregte, metastabile Sauerstoffatome  $\text{O}(^1\text{D})$  dissoziiert, welche zusammen mit Wasserdampf sog. Hydroxylradikale ( $\text{OH}$ ) bilden:

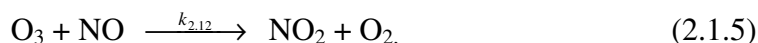


Dieser photochemische Prozess stellt eine der wichtigsten atmosphärischen Hydroxylradikal-Quellen dar [Crutzen et al. 1990]. Die durchschnittliche Konzentration liegt bei etwa  $[\text{OH}] \approx 10^6$  bis  $10^7 \text{ cm}^{-3}$  [Kramp et al. 1994]. Trotz der sehr geringen Konzentration wird die Oxidation der meisten atmosphärischen Spurengase von  $\text{OH}$ -Radikalen eingeleitet und bestimmt damit am Tage die Fähigkeit der Troposphäre, Spurenstoffe zu oxidieren und die Atmosphäre somit zu reinigen.

Etwa zwei Drittel der vorhandenen OH-Radikale reagieren in der Troposphäre mit Kohlenmonoxid, ca. ein Drittel der Radikale reagiert mit CH<sub>4</sub> und nur ein sehr geringer Anteil reagiert mit diversen anderen Gasen [Crutzen et al. 1990]. Die dabei freigesetzten Peroxyradikale RO<sub>2</sub> („R“ steht für einen organischen Rest wie z.B. CH<sub>3</sub>) und Hydroperoxyradikale HO<sub>2</sub> reagieren mit NO und erzeugen dabei NO<sub>2</sub> [Lightfoot et al. 1993]. Das auf diesem Weg erzeugte NO<sub>2</sub> spielt insofern eine entscheidende Rolle, als dass die wichtigste Quelle für anthropogen erzeugtes Ozon die Photolyse von NO<sub>2</sub> ist:



Gleichzeitig findet eine Rückreaktion mit der Reaktionskonstanten  $k_{2.12} = 1.8 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^3 \text{ Moleküle}^{-1} \text{ s}^{-1}$  [DeMore et al. 1994] statt,



welche zu einem Gleichgewicht zwischen NO, NO<sub>2</sub> und O<sub>3</sub> führt. Dieses photostationäre Gleichgewicht hängt von der vorhandenen UV-Strahlung und der NO<sub>2</sub>-Photolysefrequenz  $J_{\text{NO}_2}$  ab. Das [NO] / [NO<sub>2</sub>]-Verhältnis ergibt sich daraus zu [Leighton 1961]:

$$\frac{[\text{NO}]}{[\text{NO}_2]} = \frac{J_{\text{NO}_2}}{k_{2.12} [\text{O}_3]} \quad (2.1.6)$$

Die NO<sub>2</sub>-Photolysefrequenz  $J_{\text{NO}_2}$  hängt von verschiedenen Parameter, wie z.B. dem Sonnen-Zenitwinkel  $\theta$  oder der Globalstrahlung ab [Bahe et al. 1980, Dickerson et al. 1982, Feister 1994]. In der Literatur sind bei verschiedenen Autoren empirische Näherungen zu finden. Die Reaktionen mit Peroxyradikalen verändern das NO<sub>x</sub>-O<sub>3</sub>-Gleichgewicht, indem sie in Abhängigkeit von der NO<sub>x</sub>-Konzentration bestimmen, ob insgesamt Ozon produziert oder abgebaut wird. Dabei wird bei allen Reaktionen, bei denen NO ohne Ozonabbau zu NO<sub>2</sub> oxidiert wird, wie z.B. mit Peroxyradikalen, über die Reaktionen (2.1.3) und (2.1.4) Ozon erzeugt. Für ein [NO]/[O<sub>3</sub>]-Verhältnis von 1/5000 ([NO]  $\cong$  0.01 nmol/mol) sind die Umsätze von Produktion und Abbau in etwa gleich [Crutzen et al. 1990]. Bei höheren NO-Konzentrationen, wie z.B. stark industriell beeinflussten Gebieten der nördlichen Hemisphäre, überwiegt allerdings

die Ozonproduktion bei weitem [Olszyna et al. 1994, Derwent et al. 1994, Feister und Balzer 1991].

Die Stoffkreisläufe der Ozonproduktion werden also chemisch betrachtet durch Stickoxide geregelt und von Kohlenwasserstoffen angetrieben.

Weitere Senken für troposphärisches O<sub>3</sub> sind die trockene Deposition, also der Eintrag von Ozon in den Boden bzw. die Aufnahme durch Pflanzen, sowie die nasse Deposition durch feuchte Aerosolpartikel und Nebeltröpfchen, insbesondere wenn diese basisch sind [Staehelin und Hoigné 1982]. Während die Zersetzung von O<sub>3</sub> in reinem Wasser nur durch OH<sup>-</sup> Anionen eingeleitet wird, tritt in stark basischen Lösungen ab einem pH-Wert größer als 12 die Reaktion mit Wasserstoffperoxyd H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> in Form von HO<sub>2</sub><sup>-</sup> in den Vordergrund. Je größer also der pH-Wert der Lösung, desto effektiver läuft der Abbau von O<sub>3</sub> ab. Obwohl Ozon nur wenig wasserlöslich ist, wird es bei Anwesenheit von Wolken oder Nebel titriert, da NO noch weniger wasserlöslich ist [Jonson und Isaksen 1993]. Innerhalb von Wolkentröpfchen wird O<sub>3</sub> noch zusätzlich durch eine Reaktion mit O<sub>2</sub><sup>-</sup> abgebaut [Jonson und Isaksen 1993]

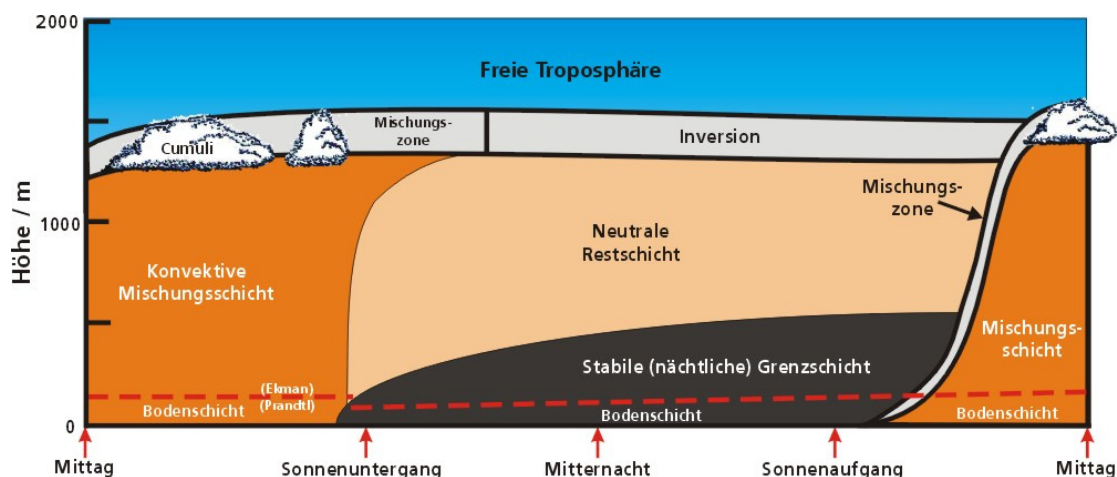


Die gemessenen hohen Variabilitäten der lokalen Ozonkonzentrationen wird unter anderem durch den Vertikalaustausch zwischen der freien Troposphäre und der Grenzschicht [Dietze 1993, Schneider und Georgii 1993, Neu et al. 1994] sowie durch Advektion [Fortezza et al. 1993, Sillman et al. 1993] hervorgerufen, was auf die relativ lange Lebensdauer von Ozon und seinen Vorläufersubstanzen zurückzuführen ist. Innerhalb der Planetaren Grenzschicht besitzt Ozon eine durchschnittliche Lebensdauer von 3-8 Tagen im Sommer und einigen 10 Tagen im Winter.

Die Ozonkonzentration in Bodennähe ist sehr eng mit der Grenzschicht verknüpft. Der durchschnittliche Tagesgang dieser Grenz- bzw. Mischungsschicht ist in Abbildung 2-1 dargestellt und wird hauptsächlich vom Boden aus angeregt. Zur freien Troposphäre hin ist diese Schicht durch eine stabile Inversion abgegrenzt. Die größte vertikale Ausdehnung wird am späten Nachmittag erreicht, wobei die Werte von einigen 100 m im Winter bis zu 2 km im Sommer reichen. Durch Abkühlung des Bodens nach Sonnenuntergang bildet sich eine neue stabile Grenzschicht aus. Diese nächtliche Grenzschicht (auch Bodeninversion) ist meist kaum dicker als 100 m. Der oberhalb davon verbleibende Teil der konvektiven Grenzschicht (auch Residual- oder Restschicht) bleibt erhalten und nach Sonnenaufgang, wenn sich die Bodeninversion rasch auflöst, durchmischt sich die Residualschicht und die nächtliche Grenzschicht (Abbildung 2-1). Daher ist in der Regel morgens ein sehr starker Anstieg der bodennahen O<sub>3</sub>-Konzentration zu verzeichnen, der hauptsächlich durch Konvektion und Turbulenzen, also einer vertikalen Durchmischung der unteren Troposphäre und einem damit verbundenen Heruntermischen ozonreicher Luft aus der Restschicht hervorgerufen wird. Die Varianz der dann im Laufe des Tages auftretenden Ozonkonzentrationen, spiegelt die viel kleinere chemische Nettoproduktion von Ozon wieder. Gegen Abend fallen die Werte meist sehr rasch wieder ab. An "normalen" Tagen bedeutet dies einen raschen Anstieg von teilweise nahezu Null am Morgen, bis



auf durchschnittlich ca. 50 nmol/mol (in Industrieregionen) und eine Abnahme am Abend wieder gegen Null. In Perioden starker Ozonbildung (z.B. bei Sommer- bzw. Photosmog) kann die  $O_3$ -Konzentration auch auf den dreifachen Wert und mehr ansteigen, wie z.B. im Sommer 2003 auf Spitzenwerte in Bodennähe von über 380  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  ( $\sim 190$  nmol/mol).



**Abbildung 2-1: Typischer Tagesgang der planetaren Grenzschicht (PBL) bei klarem und ruhigem Wetter [nach Stull 1988]**

Im Detail bleiben aber immer noch einige Fragen bezüglich des  $O_3$ -Kreislaufes unbeantwortet. Aus diesem Grund ist es notwendig, die Entwicklung der Ozonkonzentration auch in Zukunft weiter zu beobachten. Die Messung von Ozon ist darüber hinaus aber auch noch von Bedeutung, da Ozon ein sehr guter Tracer für den Stratosphären-Troposphären-Austausch ist und auf Grund der vielfältigen Vorläufersubstanzen ein Merkmal für die Luftqualität. Durch die Messung der räumlichen und zeitlichen Verteilung der Ozonkonzentration, lassen sich die Transportwege der Abgasfahnen von Industrieanlagen und sonstigen mit Ozon-Vorläufersubstanzen belasteten Luftmassen nachvollziehen und so die Dynamik der Transportprozesse besser verstehen.

Die Einheiten, in denen Ozon angegeben wird, sind sehr variabel. Die SI-Einheit für die Ozonkonzentration ist  $[\text{mol}/\text{mol}]$ , wobei in den meisten Fällen aber immer noch *ppb* (engl.: parts per billion = nmol/mol) bzw. *ppm* (engl.: parts per million =  $\mu\text{mol}/\text{mol}$ ) für die Angabe des Ozon-Mischungsverhältnisses verwendet wird. Für Bodenwerte wird die Ozonkonzentration üblicherweise als Ozonpartialdichte in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  angegeben. Die Umrechnung von Volumenmischungsverhältnissen  $X_{O_3}$  in Partialdichten  $\rho_{O_3}$  erfolgt über die Formel

$$\rho_{O_3} \left[ \frac{\mu g}{m^3} \right] = 0,5773 \cdot \frac{p}{T} \cdot X_{O_3} \left[ \frac{nmol}{mol} \right], \quad (2.1.8)$$

wobei  $p$  der Luftdruck in  $hPa$  und  $T$  die Temperatur in  $K$  ist. Gebräuchlich ist die Näherung mit  $2 \mu g/m^3 \approx 1 nmol/mol$ , was bei einem Mischungsverhältnis von  $50 nmol/mol$  einer Partialdichte am Boden von etwa  $100 \mu g/m^3$  entspricht. Weitere gängige Einheiten sind der Ozonpartialdruck  $p_{O_3}$  in  $nbar$  ( $1 nbar = 0,1 mPa$ ) und die Dobson-Einheit  $DU$  (Dobson Unit), die den gesamten Ozongehalt der Atmosphäre in einer Ozonsäule, welche auf Normalbedingungen ( $T_0 = 273 K$ ,  $p_0 = 1013 hPa$ ) reduziert ist, darstellt. Eine  $DU$  entspricht dabei einem Ozongehalt der einer Ozonschicht von  $0,01 mm$  Dicke unter Normalbedingungen gleich kommt.

## 2.2 Streuung in der Atmosphäre

Wie bereits einleitend beschrieben, ist die Streuung ein zentraler Bestandteil der berührungslosen Analyse der Atmosphäre mit den Methoden der Fernerkundung. Bei aktiven Messmethoden mit eigener Lichtquelle werden Lichtpulse in die Atmosphäre gesandt. Diese werden dann durch die Wechselwirkung mit den Bestandteilen der Atmosphäre unter Umständen verändert und teilweise zurückgestreut und detektiert. Durch die Analyse dieser zurückgestreuten Photonen in Bezug auf ihre Wellenlänge, Polarisierung und die Anzahl lassen sich dann wiederum Rückschlüsse auf die Zusammensetzung der Atmosphäre ziehen.

Bei der Wechselwirkung von Licht mit den Bestandteilen der Atmosphäre sind zwei Prozesse wichtig: die Streuung und die Absorption. Zusammengefasst ergeben diese beiden die Extinktion. Der Begriff der Absorption wird hier verwendet, wenn die Frequenz des eingestrahlten Lichts mit  $E = h \cdot \nu$  einem Elektronenübergang in einem Molekül oder Atom, bzw. einem Schwingungs- oder Rotationsübergang eines Moleküls entspricht.

Die mittlere Stoßzeit der Luftmoleküle liegt in der unteren Troposphäre etwa bei  $\tau = 0,14 ns$  [Dubin and Hull 1976] und ist damit deutlich kürzer als die typischen Lebensdauern der angeregten Zustände. Deshalb wird die Energie meist durch Stöße, auch Quenching genannt, übertragen und nicht durch Fluoreszenzstrahlung. Die elektronischen Übergänge liegen meist im sichtbaren und UV Spektralbereich und weisen gegenüber den Vibrations- und Rotationsübergängen einen höheren Absorptionswirkungsquerschnitt auf.

Der Durchgang eines monochromatischen Laserstrahls geringer Intensität durch die Atmosphäre kann prinzipiell durch das bekannte Beer-Lambert Gesetz [Zuev 1976]

$$dP(\lambda, r) = -\alpha(\lambda, r)P(\lambda, r)dr \quad 2.2.1$$

beschrieben werden. Dieses besagt, dass der Energieverlust  $dP(\lambda, r)$  auf der Strecke  $dr$  durch die Atmosphäre proportional zur eingestreuten Energie  $P(\lambda, r)$  mit der Wellenlänge  $\lambda$  und dem Extinktionskoeffizienten  $\alpha(\lambda, r)$  ist.

Der Extinktionskoeffizient wiederum setzt sich aus Streu- und Absorptionsanteilen zusammen, die wellenlängenabhängig und teilchenspezifisch sind. Der gesamte Extinktionskoeffizient für die unterschiedlichen Bestandteile der Atmosphäre  $i$  mit der Teilchenzahl  $N_i$  ist dann

$$\alpha_{Gas}(r, \lambda) = \sum_i N_i(r) \cdot [\sigma_s^i(\lambda, r) + \sigma_a^i(\lambda, r)] . \quad 2.2.2$$

$\sigma_{a,s}^i(\lambda, r)$  sind hierbei der dem Teilchen  $i$  entsprechende Absorptions- und Streuquerschnitt mit entsprechenden Indizes a oder s.

Die erhaltene Energie des durch die Atmosphäre auf einer Länge  $R$  transmittierten Strahls kann durch Integration von Gleichung 2.2.1 als

$$P(\lambda, R) = P_0(\lambda) \cdot \exp[-\tau(\lambda, R)] \quad 2.2.3$$

geschrieben werden. Die optische Dicke  $\tau(\lambda, R)$  ist definiert als das Integral des Extinktionskoeffizienten über die zurückgelegte Strecke

$$\tau(\lambda, R) \equiv \int_0^R \alpha(\lambda, r) dr . \quad 2.2.4$$

Für das Lidar-Signal ist die Streuung in Rückwärtsrichtung ( $180^\circ$ ) maßgeblich, welche mit dem Raumwinkelement  $d\Omega$  durch

$$\beta(\lambda, r) \equiv \frac{1}{P} \left( \frac{d^2 P(\lambda, r)}{d\Omega dr} \right)_\pi . \quad 2.2.5$$

definiert ist. Für ein gegebenes Volumen mit der Anzahl der Streuteilchen  $N_i$  und den zugehörigen Streuquerschnitten  $\left(\frac{d\sigma_s^i}{d\Omega}\right)_\pi$  ergibt sich dieser Rückstreuungskoeffizient  $\beta(\lambda, r)$  zu

$$\beta(r, \lambda) = \sum_i N_i(r) \cdot \left(\frac{d\sigma_s^i(\lambda, r)}{d\Omega}\right)_\pi . \quad 2.2.6$$

Je nach Partikelgröße der wechselwirkenden Teilchen, unterscheidet man bei der Streuung zwei Fälle. Zum einen Streuung an Atomen und Molekülen, Teilchen also, deren Durchmesser klein gegenüber der Messwellenlänge sind, und zum anderen Streuung an Aerosolen. Die Molekülstreuung wird nach ihrem Begründer, Lord Rayleigh, der bereits 1871 einen zu  $\lambda^{-4}$  proportionalen Wirkungsquerschnitt  $\sigma$  gefunden hat, auch Rayleighstreuung genannt (Jackson 1982). Das Kriterium, dass der Durchmesser des streuenden Teilchens wesentlich kleiner als die Wellenlänge ist, trifft im sichtbaren Wellenlängenbereich im Wesentlichen auf Atome und Moleküle zu. Mit der Theorie der Rayleighstreuung lässt sich u. a. die blaue Farbe des Himmels und die rötliche Färbung der Abendsonnen erklären. Für die Streuung an größeren Partikeln wird die Theorie von Gustav Mie herangezogen, welcher bereits 1908 die Maxwellgleichungen für die Wechselwirkung einer ebenen, monochromatischen Welle mit einer dielektrischen Kugel löste. In der Praxis bedeutet das aber, dass die übliche Abschätzung der Partikelstreuung nur eine Näherung darstellt, da die wenigsten Partikel sphärisch und homogen verteilt sind. Für in Wasser gelöste oder mit einem Wassermantel umgebene Aerosole ist diese Rechnung aber dennoch (aufgrund der anzunehmenden Kugelform) näherungsweise erfüllt. Mit steigender Partikelgröße ist die Mie-Streuung immer mehr eine reine Vorwärtsstreuung und weniger stark wellenlängenabhängig als die Rayleighstreuung, weshalb z. B. Dunst meist weißlich-grau erscheint.

### 2.2.1 Rayleigh-Streuung

Bei der Rayleigh-Streuung handelt es sich um elastische Streuung an Teilchen, deren Radius wesentlich kleiner als die Wellenlänge des Lichts ist. Das trifft im Wesentlichen auf die am häufigsten in der Atmosphäre vorkommenden Moleküle, Stickstoff und Sauerstoff zu.

Für Licht der Wellenlänge  $\lambda$  kann die Extinktion  $\alpha_R$  durch die Rayleigh-Streuung der Atmosphäre, unterhalb einer Höhe von 100 km durch [Collis & Russel 1976]

$$\alpha_R(\lambda, r) \equiv N(r) \cdot \sigma_R(\lambda) = N(r) \cdot 4,56 \left(\frac{\lambda}{550\text{nm}}\right)^{-4} \cdot 10^{-31} \text{m}^2 \quad 2.2.7$$

beschrieben werden, wobei  $N(r)$  die Anzahl der streuenden Teilchen, die einen Streuquerschnitt von  $\sigma_R(\lambda)$  besitzen, ist.

Das sog. Lidar-Verhältnis von Extinktions- zu Rückstreukoeffizient ergibt sich dabei aus der Winkelverteilung zu

$$\frac{\alpha_R}{\beta_R} = \left( \frac{8\pi}{3} \right) . \quad 2.2.8$$

Dabei ist zu beachten, dass  $\sigma_R(\lambda)$  proportional zu  $\lambda^{-4}$  ist, aber das Verhältnis von  $\alpha$  zu  $\beta$  konstant bleibt.

Prinzipiell bleibt die Frequenz bei der Rayleighstreuung erhalten. Auf Grund der thermischen Bewegung ist die Streustrahlung aber durch den Doppler-Effekt auch dopplerverbreitert. Die Verbreiterung beträgt im sichtbaren Spektrum in Bodennähe, bedingt durch eine mittlere Molekülgeschwindigkeit von etwa 450 m/s [Dubin 1976] etwa 2 GHz. Hinzu kommt noch ein inelastischer Anteil der Streuung durch den Raman-Effekt, der von den Rotations- und Vibrationsübergängen der molekularen Bestandteile der Atmosphäre herrührt. Dieser Beitrag zur Verbreiterung ist weitaus größer als die Dopplerverbreiterung. Allerdings ist der Anteil der Raman-Streuung an der gesamten Streuung um etwa drei Größenordnungen kleiner als die elastische Rayleighstreuung. In der Summe kann sie aber dennoch einen messbaren Beitrag zum Signal liefern (Raman-Lidar).

### 2.2.2 Mie-Streuung

Der differentielle Wirkungsquerschnitt einer Kugel wird allgemein nach der Mie-Theorie durch

$$\frac{d\sigma_M}{d\Omega}(\lambda, \theta, \phi) = \frac{1}{k^2} (i_2(\theta, ka, n) \cos^2 \phi + i_1(\theta, ka, n) \sin^2 \phi) \quad 2.2.9$$

beschrieben, wobei  $k = \frac{2\pi}{\lambda}$  und  $a$  der Radius des Teilchens ist. Die Funktion  $i_{1,2}(\theta, ka, n)$  mit Werten von  $ka > 0,5$  beschreibt die dimensionslose Winkelverteilung des gestreuten Lichts [Kerker 1969], da die Teilchen nicht mehr klein gegenüber der Wellenlänge sind. Dabei ist  $n$  der Brechungsindex des Teilchens relativ zur Umgebung.

Für das Lidar- und DIAL-Verfahren ist aber nur der totale Streuquerschnitt relevant:

$$\sigma_M(\lambda) = \frac{1}{k^2} \int_0^\pi \int_0^\pi (i_2(\theta, ka, n) \cos^2 \phi + i_1(\theta, ka, n) \sin^2 \phi) \sin \theta d\theta d\phi \quad 2.2.10$$

Die Streueffizienz  $Q(a)$  für ein sphärisches Teilchen ist gegeben durch

$$Q(a) = \frac{\sigma_M(a)}{\pi a^2} \quad . \quad 2.2.11$$

Hierbei wird der geometrische Querschnitt des Teilchens mit Radius  $a$  zum Extinktionsquerschnitt  $\sigma_M$  ins Verhältnis gesetzt. Mit steigendem Radius des Teilchens wächst die Streueffizienz sehr stark an, oszilliert dann geringfügig und konvergiert für sehr große Werte von  $a$  gegen zwei, also  $\lim_{a \rightarrow \infty} Q(a) = 2$ . Das heißt, dass der Extinktionsquerschnitt doppelt so groß ist wie der Querschnitt des Teilchens. Diese Effizienzen größer als eins lassen sich durch die Lichtbeugung an den Rändern des Teilchens erklären. Die Richtung der Streuung, die sog. Phasenfunktion, ist meist sehr komplex, wobei aber mit größer werdendem Radius die Vorwärtsstreuung immer mehr an Gewicht gewinnt.

Die typische Größenverteilung der Aerosolpartikel mit Radien größer 10 nm kann als Potenzverteilung mit negativem Exponenten ( $-s-1$ ) geschrieben werden [van de Hulst 1981]. Mit Werten für  $s$  zwischen 3 und 4 ist die Zahl der Teilchen pro Volumen, deren Radius im Bereich von  $[a, a+da]$  liegt, gleich

$$dN(a) = C \cdot a^{-s-1} da \quad . \quad 2.2.12$$

Bei einer bestimmten Wellenlänge  $\lambda$  ist somit der gesamte Mie-Extinktionskoeffizient durch die Superposition aller Größenklassen gegeben, d.h.

$$\begin{aligned} \alpha_M(\lambda) &= \int \pi \cdot a^2 Q(a) dN \\ &= \pi \cdot C \int_0^\infty a^{-s+1} Q(a) da \\ &= \pi \cdot C \left( \frac{\lambda}{2\pi} \right)^{-s+2} \cdot \int_0^\infty x^{-s+1} Q(x) dx \end{aligned} \quad 2.2.13$$

mit  $x = \frac{2\pi \cdot a}{\lambda}$ . Für  $s$  größer 2 und kleiner 6 konvergiert das Integral und für die Mie-Extinktion ergibt sich die folgende Wellenlängenabhängigkeit

$$\alpha_M(\lambda) \propto \lambda^{-s+2} \approx \frac{1}{\lambda} \quad , \quad 2.2.14$$

die für Korrekturen von Lidar-Signalen von Bedeutung ist. Typischerweise werden laut Roedel (2000) empirisch Werte von  $s \approx 3,3$  beobachtet, was auch mit den Ergebnissen von Völger et al. (1996) übereinstimmt. Dieser gibt Werte zwischen  $\lambda^{-1}$  und  $\lambda^{-1/2}$ , also  $s$  zwischen 3 und 3,5 an. Im Gegensatz zur Rayleigh-Streuung ist das Lidar-Verhältnis  $\alpha/\beta$  aber nicht konstant, sondern von verschiedenen Parametern wie Wellenlänge und Partikelgrößenverteilung abhängig. Für die Auswertung von DIAL-Daten heißt das aber auch, dass zusätzliche Daten oder Annahmen bezüglich der Aerosolverteilung gemacht werden müssen, um die Fehler zu minimieren (siehe Kapitel 8.1.4).

### 3. Differential Absorption Lidar (DIAL)

Das Prinzip des Lidar-Verfahrens ist in Abbildung 3-1 schematisch dargestellt. Es werden kurze Lichtpulse einer bestimmten Wellenlänge ausgesandt, z. B. von einem Laser, die an Molekülen und Teilchen in der Atmosphäre gestreut und absorbiert werden. Dabei wird der Teil des Lichts, welcher in  $180^\circ$  Richtung zurückgestreut wird, detektiert. Über die Laufzeit dieses Rückstreusignals wird mit Hilfe der Lichtgeschwindigkeit die Entfernung zum streuenden Medium ermittelt. Auf Grund des meist sehr kleinen Gesichtsfeldes des Empfangsteleskops ( $\sim 10^{-3}$  rad) kann die Streufunktion als nahezu isotrop angesehen werden, weshalb die Intensität des Signals in erster Näherung proportional zu  $1/r^2$  ist, was in dem angedeuteten Rückstreusignal  $P(r)$  in der rechten Bildhälfte (Abbildung 3-1) zu sehen ist.

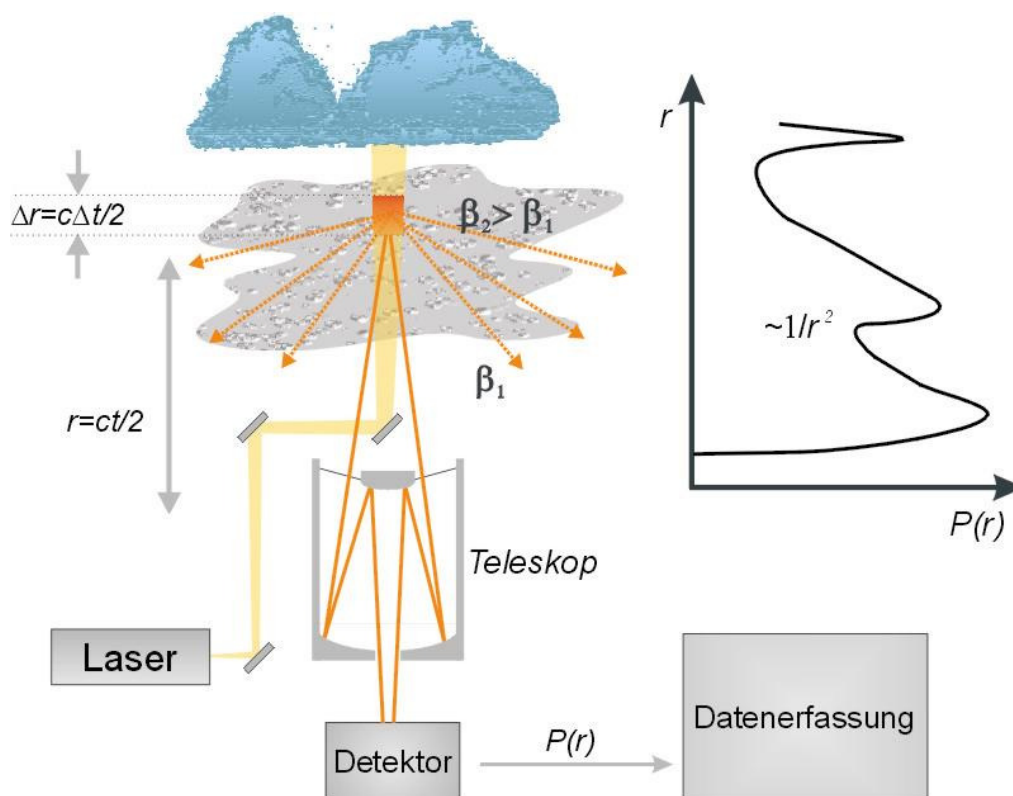


Abbildung 3-1: Schematische Darstellung des Lidar Prinzips mit den Rückstreukoeffizienten  $\beta_n$  und einem angedeuteten Rückstreusignal  $P(r)$ , welches proportional zu  $1/r^2$  ist.

Erste Lidar-Messungen wurden bereits vor der Entwicklung des Lasers, mit Hilfe von Spektrallampen als Emittier durchgeführt. Diese haben allerdings den Nachteil, dass



sie weder kohärent sind, noch eine hohe spektrale Leistungsdichte aufweisen. Dadurch ist die Reichweite sehr eingeschränkt und die Detektion muss entsprechend empfindlich sein.

Obwohl erste Lidar Messungen bereits vor Erfindung des Lasers mit Hilfe von Blitzlampen als Lichtquelle durchgeführt wurden [Middleton and Spilhaus 1953], kam der Durchbruch bei der Entwicklung von Lidar-Systemen erst 1960 mit der Entdeckung des Lasers [Maiman 1960]. Erst diese waren in der Lage, Strahlung mit den entsprechenden spektralen Anforderungen in ausreichender Intensität und Qualität zu erzeugen. Durch die kontinuierliche Weiterentwicklung dieser Technologie, hin zu neuen Lasertypen mit unterschiedlichen Wellenlängen und immer größeren Leistungsdichten, eröffneten sich auch bei Lidar-Systemen immer neue Anwendungsmöglichkeiten.

Auf der Empfängerseite wird, wie in Abbildung 3-1 zu sehen ist, ein Teleskop zum Sammeln der zurückgestreuten Photonen mit einem Detektor für deren quantitative Bestimmung (Photomultiplier, Photodiode, APD, etc.) eingesetzt. Um das empfangene Signal vom Rauschen des solaren oder stellaren Hintergrundes abzuheben, muss der Detektor wellenlängensensitiv sein oder es müssen entsprechende Filter eingebaut werden, welche die Messsignale aus dem Hintergrundlicht herausfiltern. Dies kann je nach Anforderung durch den Einsatz von z. B. Kantenfiltern, Gittern oder Interferenzfiltern realisiert werden. Da das zurückgestreute Signal meist sehr klein ist und dazu noch innerhalb des zu messenden räumlichen Bereiches um einige Größenordnungen abnimmt, muss der Nachweis der rückgestreuten Photonen eine dementsprechend hohe Verstärkung und Dynamik besitzen. Auf Grund der großen Dynamik des Signals werden häufig auch zwei Teleskope für den Nah- und Fernfeldbereich, bzw. zwei gesonderte Messkanäle, eingesetzt.

Der Zusammenhang des von der Atmosphäre zurückgestreuten und empfangenen Signals mit der ausgesandten Leistung wird durch die Lidar-Gleichung beschrieben [Measures 1984].

$$P(r, \lambda) = P_0(\lambda) \frac{A \cdot \eta \cdot O(r)}{r^2} \cdot \frac{c \cdot \Delta t}{2} \beta(r, \lambda) \cdot \exp \left( -2 \int_0^r \alpha(r, \lambda) dr \right). \quad 3.2$$

Hierbei ist

$P(r, \lambda)$	= empfangene Leistung
$P_0$	= Ausgangsleistung des Lasers
$A$	= wirksamen Fläche des Empfangsteleskops
$\eta$	= Gesamteffizienz des Detektors
$O(r)$	= Überlappungsfunktion von Sendestrahle und Teleskopgesichtsfeld
$r$	= Abstand zum streuenden Volumen
$\Delta t$	= Pulsdauer
$\lambda$	= Wellenlänge
$c$	= Lichtgeschwindigkeit

Der dominierende Anteil dieser Funktion ergibt sich aus der Bestrahlungsstärke  $E=I/r^2$ . Der Extinktionskoeffizient  $\alpha$  der Atmosphäre setzt sich, ebenso wie der Rückstreukoeffizient  $\beta$ , aus einem Rayleigh-Anteil für die Streuung an Molekülen und einem Mie-Anteil für die Streuung an Teilchen zusammen (siehe Kap. 2.2.1 & 2.2.2), wobei der Extinktionskoeffizient noch einen zusätzlichen Term für die Absorption durch verschiedene Gase enthält. So lässt sich der Rückstreukoeffizient schreiben als

$$\beta(r, \lambda) = \beta_{Mie}(r, \lambda) + \beta_{Ray}(r, \lambda) \quad 3.3$$

und der Extinktionskoeffizient entsprechend mit  $\alpha_{Gas}(r, \lambda) = \sum_i N_i(r) \cdot \sigma_i(\lambda)$

$$\alpha(r, \lambda) = \alpha_{Mie}(r, \lambda) + \alpha_{Ray}(r, \lambda) + \alpha_{Gas}(r, \lambda) \quad . \quad 3.4$$

$N_i$  sind die Anzahl der Teilchen des Gases  $i$  mit einem Streuquerschnitt von  $\sigma_i(r, \lambda)$ .

Durch umstellen der Lidar-Gleichung 3.2 erhält man

$$\ln \left( \frac{P(r, \lambda)}{P_0(r)} \frac{r^2}{A \cdot \eta \cdot O(r)} \right) = \ln \left( \frac{c \Delta t}{2} \beta(r, \lambda) \right) - 2 \int_0^r \alpha(r, \lambda) dr \quad . \quad 3.5$$

Die Systemparameter  $(P_0, A, \eta, \Delta t)$  lassen sich dabei zu einer Konstanten zusammenfassen und die Überlappungsfunktion  $O(r)$ , welche die Signalintensität in Abhängigkeit der verwendeten Empfangsoptik beschreibt, kann im Fernfeld gleich eins gesetzt werden. Allerdings enthält die Gleichung 3.5 immer noch zwei Unbekannte  $\alpha$  und  $\beta$ . Das so genannte Lidar-Verhältnis  $\frac{\alpha}{\beta}$  besitzt für die Rayleigh-

Streuung ein festes Verhältnis (Gl. 2.2.8). Für die Mie-Streuung allerdings, ist dieses Verhältnis variabel und von der Größenverteilung der Teilchen abhängig. Wenn das Lidar-Verhältnis bekannt ist, kann die Lidar-Gleichung invertiert werden, wobei ein erweitertes Klett-Verfahren [Klett 1985] Anwendung findet.

Mit Hilfe der Signalfunktion, die definiert ist als

$$S(r, \lambda) \equiv \ln(P(r, \lambda)r^2) \quad 3.6$$

lässt sich Gleichung 3.2 auch wie folgt schreiben:

$$S(r, \lambda) = \ln \beta(r, \lambda) - 2 \int_0^r \alpha(r, \lambda) dr + \text{const.} \quad 3.7$$

Wenn man von der sehr stark vereinfachenden Annahme ausgeht, dass der Rückstreuoeffizient  $\beta$  entlang der Messstrecke konstant bleibt, also

$$\frac{d}{dr} \beta(r, \lambda) \approx 0 \quad , \quad 3.8$$

so erhält man für den Extinktionskoeffizient  $\alpha$

$$\alpha(r, \lambda) = -\frac{1}{2} \frac{d}{dr} S(r, \lambda) \quad . \quad 3.9$$

Daraus lässt sich eine erste qualitative Abschätzung über die Aerosolbelastung der vermessenen Atmosphäre erstellen, was für die Auswertung der empfangenen Signale notwendig ist.

Wie bereits erwähnt, kann für große Entfernungen die Überlappungsfunktion  $O(r)$  gleich Eins gesetzt werden. Allerdings wird der Nahbereich und damit die Auslegung der Optik sowie die Auswertung der empfangenen Daten stark von der sog. Überlappungsfunktion (im Folgenden kurz Überlapp genannt) beeinflusst, welche im Allgemeinen sehr komplex ist. Die Entfernung  $r_1$ , ab der ein vollständiger Überlapp  $O(r)=1$  erreicht ist, kann für den Fall einer zentralen Auskopplung des Sendestrahls unter Annahme kleiner Winkel ( $\gamma \ll 1 \rightarrow \tan(\gamma) \sim \gamma$ ), mit

$$r_1 = \frac{2R}{\theta - \omega} \quad 3.1$$

wie in Abbildung 3-2 zu sehen ist, abgeschätzt werden. Hierbei ist  $\omega$  der Divergenzwinkel des Laserstrahls,  $R$  der Teleskopradius und  $\theta$  der Öffnungswinkel des Teleskops (FOV, engl.: Field of View). Sofern die Blende im Systemfokus

platziert ist, ist das FOV des Teleskops, mit der Brennweite  $f$  und dem Blendendurchmesser  $d$  über  $FOV = \frac{d}{f}$  verknüpft.

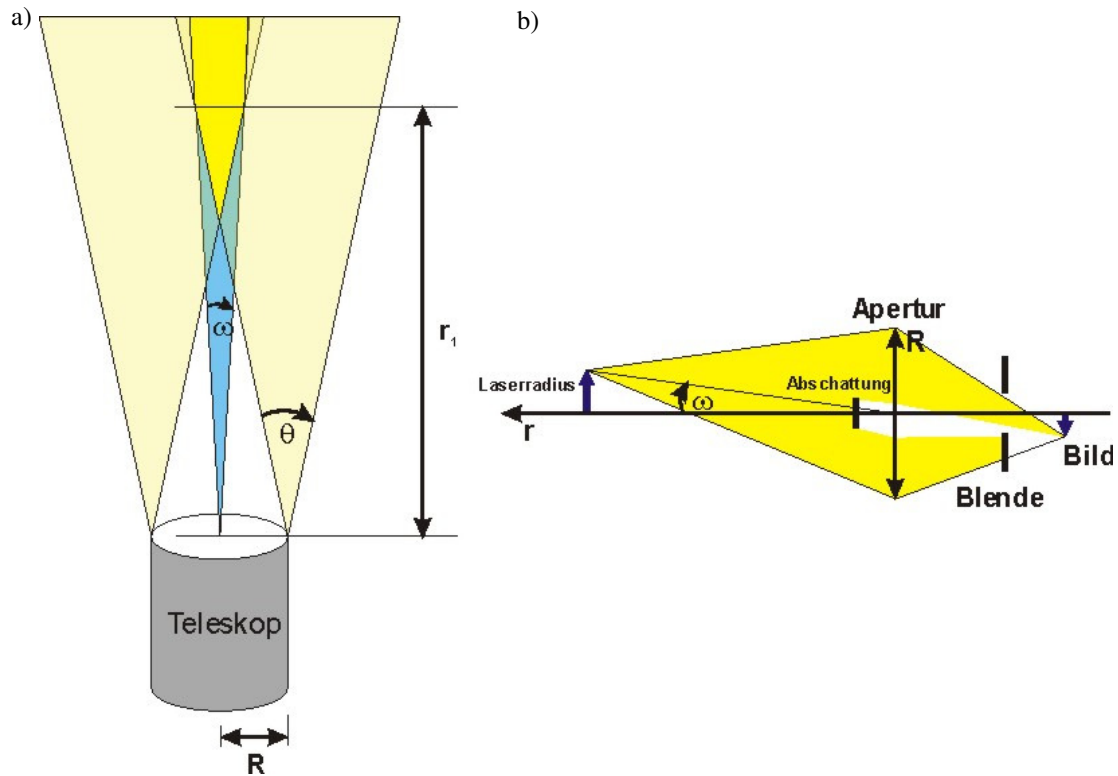
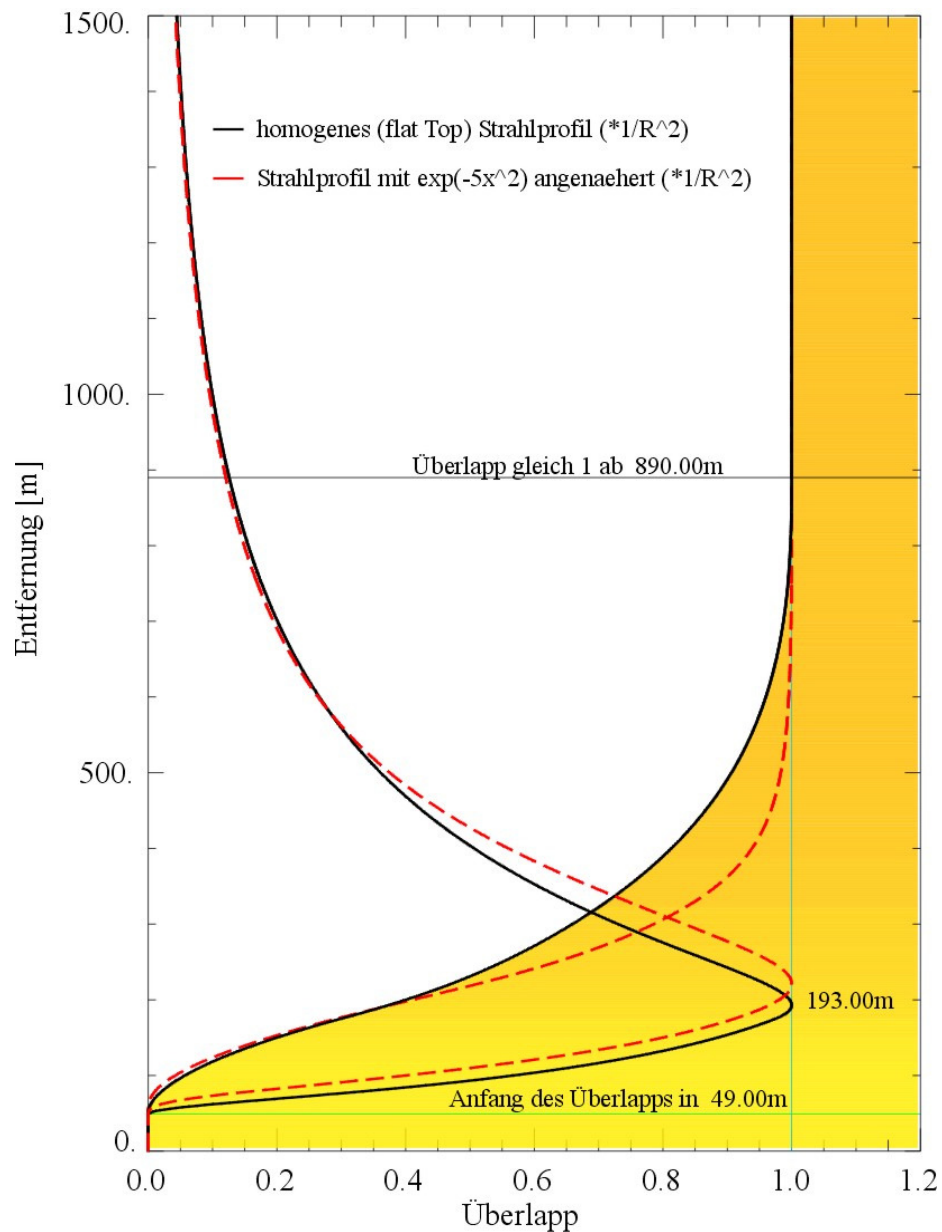


Abbildung 3-2: a) die vereinfachte Darstellung des vollständigen Überlapps in der Entfernung  $r$  bei einem Öffnungswinkel des Teleskops  $\theta$  und der Divergenz des Laserstrahls  $\omega$ . b) die allgemeine Betrachtung des opt. Systems und des sich damit ergebenden Überlapps.

Stark vereinfacht ausgedrückt bedeutet diese Näherung, dass ab der Entfernung  $r_1$  das gesamte zurückgestreute Licht bis hin zu den Randstrahlen, welche auf die Apertur (Spiegel) treffen, auch auf den Detektor abgebildet werden und die Abschattung (meist durch den Sekundärspiegel) nur mehr ein fixen Prozentsatz der Apertur verdeckt.



**Abbildung 3-3: Überlappungsfunktion in Abhängigkeit von der Entfernung zum Empfänger. Die schwarze Kurve gilt für ein Flat-Top Laserstrahlprofil, die rote für ein genähertes Gaußprofil. Zu sehen ist einerseits die reine Überlappungsfunktion und zum anderen die mit  $1/r^2$  multiplizierte Überlappungsfunktion. Da der Laserstrahl kleiner als die Abschattung ist, beginnt das empfangene Signal erst in einem deutlichen Abstand vom Teleskop.**

Eine genauere Kenntnis dieser Überlappungsfunktion ist notwendig, wenn das Signal unterhalb des vollständigen Überlapps  $O(r) = 1$  ausgewertet werden soll, oder beim Einsatz eines Nah- und Fernfeldkanals, um die räumliche Überschneidung dieser beiden Kanäle anpassen zu können, bzw. um die Signaldynamik abschätzen zu können.

Im Falle einer koaxialen Auskopplung des Lasers ist diese Funktion u. a. von folgenden Parametern abhängig:

- Größe des Primärspiegels
- Abschattung (z. B. Sekundärspiegel, Laserauskopplung)
- Abstand von Primär- zu Sekundärspiegel (Cassegrain)
- Öffnungswinkel des Teleskops (Blendendurchmesser und –position)
- Divergenzwinkel
- Anfangsradius des Laserstrahls

Auch das Strahlprofil des Lasers geht mit in die Überlappungsfunktion ein, wie in Abbildung 3-3 zu sehen ist. Allerdings verändert sich dieses beim Durchgang durch die Atmosphäre z.B. durch Dichteschwankungen, weshalb sich die Berechnungen auf den Fall einer ruhigen Wetterlage ohne Veränderung des Strahlprofils beziehen. Die für die Berechnungen verwendeten Systemparameter zu den in Abbildung 3-3 aufgetragenen Kurven sind in Tabelle 3-1 zusammengefasst. Das gemessene Signal beginnt demnach erst in einem deutlichen Abstand vom Teleskop, da der Laserstrahl kleiner als der Sekundärspiegel ist und somit auf den ersten Metern vollständig durch diesen abgeschirmt wird.

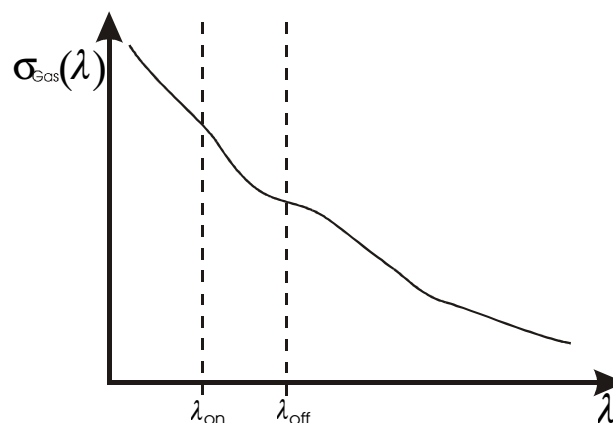
Durchmesser Primärspiegel	350 mm
Durchmesser der Abschattung durch den Sekundärspiegel	108,5 mm
Teleskoplänge	1020 mm
Laserdurchmesser (Entfernung 0 m)	5 mm
Laserdivergenz	0,8 mrad
FOV (Blendendurchmesser/Gesamtbrennweite)	1,2 mrad (6 mm/5000 mm)

**Tabelle 3-1: Systemdaten für die Kalkulation der Überlappungsfunktion in Abbildung 3-3.**

Die Schwierigkeit bei der Auslegung der Empfangsoptik liegt u. a. in der Tatsache, dass für ein gutes Signal-Rausch-Verhältnis das Hintergrundlicht minimiert werden muss, weshalb das Gesichtsfeld des Teleskops so gering wie möglich gehalten wird. Mit einer einzigen Messung soll aber auch der gesamte Messbereich erfasst werden, das bedeutet bei dieser Arbeit ein Höhenintervall von 600 m bis etwa 3000 m. In diesem Bereich wandert der Focus (Linsengleichung:  $1/f_D = 1/f_{System} - 1/Dist.$ ) um etwa 3,4 cm (Teleskopbrennweite  $f_{System} = 5\text{ m}$ , siehe Tabelle 3-1), wobei aber die Position der Blende fix bleibt und so zu Signalverlusten führt. Dabei wird die Blende meist hinter dem Systemfokus so positioniert, dass der Fernfeldbereich vollständig detektiert und der sehr viel stärkere Nahfeldbereich nur teilweise erfasst wird. Es gibt keine perfekte Lösung für dieses Problem, sondern nur einen Kompromiss zwischen gutem S/R-Verhältnis für große Distanzen und möglichst frühem Beginn des Überlapps im Nahbereich. Dabei ist darauf zu achten, dass der Empfänger im Nahfeldbereich nicht übersteuert wird.

Für einen Öffnungswinkel des Teleskops von 1,2 mrad (Blende 6 mm) und den Daten aus Tabelle 3-1 ergibt sich ein vollständiger Überlapp ab einer Entfernung von 890 m, bei 1,6 mrad (Blende 8 mm) verkürzt sich dieser Abstand deutlich. Ein vollständiger Überlapp ist dann bereits nach 444 m erreicht. Berücksichtigt man den Rückgang der Signalstärke proportional zu  $1/r^2$ , so liegt das Maximum des Signals in einer Entfernung von 193 m (FOV 1,2 mrad), also noch weit unterhalb des vollständigen Überlapps. Entsprechend muss der Detektor in Bezug auf Empfindlichkeit und Dynamik ausgelegt werden. Hier wird aber auch sehr deutlich, dass die daraus entstehende Abschattung des Signals im Nahbereich durchaus von Vorteil sein kann, da das sehr starke Signal im unteren Bereich gedämpft wird, wohingegen das schwache Signal aus größeren Entfernungen davon nicht betroffen ist.

Die Konzentrationsbestimmung eines speziellen Gases in der Atmosphäre ist mit dieser Methode aber nicht möglich. Um dies messen zu können, wird das Rückstreu-Lidar auf zwei verschiedene Messwellenlänge, auf das sog. DIAL-Verfahren (**D**ifferential **A**bsorption **L**idar), erweitert [Schotland 1974]. Dabei werden die beiden Laserstrahlen, die spektral sehr nah beieinander liegen, in das gleiche zu untersuchende Atmosphärenvolumen gesendet. Sie durchlaufen dabei idealerweise die identischen Luftmassen und sollten somit auch eine identische Extinktion durch die Atmosphäre (nicht des zu messenden Spurengases!) erfahren. Allerdings sollten Sie unterschiedlich stark von dem zu bestimmenden Spurengas absorbiert werden (siehe Abbildung 3-4), wodurch dessen Konzentration bestimmt werden kann.



**Abbildung 3-4:** Die durchgezogene Linie stellt die Absorption eines Spurengases (z. B.  $\text{O}_3$ ) in Abhängigkeit der Wellenlänge dar. Die beim DIAL verwendeten Wellenlängen  $\lambda_{\text{on}}$  und  $\lambda_{\text{off}}$  werden unterschiedlich stark absorbiert und aus der Differenz des zurückgestreuten Signals lässt sich wiederum die Konzentration bestimmen.

Die Auswahl der beiden für die Messung zu verwendenden Wellenlängen ist, wie in Kapitel 4 gezeigt wird, sehr wichtig und von verschiedenen Kriterien wie z. B. differentiellem Absorptionsquerschnitt, absoluter Absorption, Kreuzkorrelation zu anderen Spurengasen, etc. abhängig.

Einige Spurenstoffe, wie z.B.  $\text{H}_2\text{O}$ , besitzen diskrete Absorptionslinien, auf die eine der beiden Wellenlängen justiert wird und entsprechend die zweite, quasi als Referenz dazu, spektral leicht 'versetzt' wird. In der Literatur ist es daher Usus, die

Wellenlänge, die stärker absorbiert wird, mit  $\lambda_{on}$  ('on' für 'online') und entsprechend diejenige mit der geringeren Absorption als  $\lambda_{off}$  ('off' für 'offline') zu bezeichnen. Andere Spurengase, wie z. B.  $O_3$  (siehe Abbildung 4-1), besitzen keine stark ausgeprägten Absorptionslinien, sondern absorbieren in einem weiten Bereich, wobei die Nomenklatur aber dennoch sinngemäß Anwendung findet.

Der effektive oder auch differentielle Streuquerschnitt ist die Differenz der beiden Absorptionsquerschnitte

$$\Delta\sigma_{Gas} = \sigma_{Gas}(\lambda_{on}) - \sigma_{Gas}(\lambda_{off}) \quad . \quad 3.10$$

Um die Konzentration eines Spurengases in Abhängigkeit von der Entfernung  $r$  zu bestimmen, wird der Quotient aus zwei Lidar-Signalen (Gl. 3.2)  $P_{on}$  und  $P_{off}$  gebildet, wobei sich die systemabhängigen Parameter herauskürzen. Daraus folgt

$$\frac{P(r, \lambda_{on})}{P(r, \lambda_{off})} = \frac{P_0(\lambda_{on})}{P_0(\lambda_{off})} \cdot \frac{\beta(r, \lambda_{on})}{\beta(r, \lambda_{off})} \cdot \exp\left(-2 \int_0^r [\alpha(r, \lambda_{on}) - \alpha(r, \lambda_{off})] dr\right) \quad 3.11$$

Durch umstellen und logarithmieren der Gleichung 3.11 ergibt sich

$$-2 \int_0^r [\alpha(r, \lambda_{on}) - \alpha(r, \lambda_{off})] dr = \ln\left(\frac{P(r, \lambda_{on})}{P(r, \lambda_{off})} \frac{P_0(\lambda_{off})}{P_0(\lambda_{on})}\right) + \ln\left(\frac{\beta(r, \lambda_{on})}{\beta(r, \lambda_{off})}\right) \quad 3.12$$

Bei einem hinreichend kleinen Intervall  $\Delta r = r_2 - r_1$  ist die Näherung  $dr \approx \Delta r$  erlaubt. Der Extinktionskoeffizienten  $\alpha_{Gas}(r, \lambda) = \sum_i N_i(r) \cdot \sigma_i(\lambda)$  wird für zwei unterschiedliche Wellenlängen mit Gl. 3.10 zu  $\alpha_{Gas}(r, \lambda_{on}) - \alpha_{Gas}(r, \lambda_{off}) = \sum_i N_i(r) \cdot \Delta\sigma_i(\lambda_{on}, \lambda_{off})$ . Unter Verwendung von Gl. 3.4 und der Definition von  $\alpha_{Gas}$  für zwei verschiedene Wellenlängen, ergibt sich für die Entfernung  $R = \frac{r_1 + r_2}{2}$

$$\begin{aligned} -2 \int_0^R [\alpha(r, \lambda_{on}) - \alpha(r, \lambda_{off})] dr &= -2 \cdot \Delta r \cdot [\alpha_{off}^{rest}(R) - \alpha_{on}^{rest}(R)] \\ &\quad + 2 \cdot \Delta r \sum_i N_i(R) \cdot \Delta\sigma_i(\lambda_{on}, \lambda_{off}) \end{aligned} \quad 3.13$$



Somit ergibt sich aus Gl. 3.12 die vollständige DIAL-Gleichung zu

$$N(R) = \frac{I}{2 \cdot \Delta r \cdot \Delta \sigma(\lambda_{on}, \lambda_{off})} \left\{ \ln \left[ \frac{P(r_2, \lambda_{off}) P(r_1, \lambda_{on})}{P(r_2, \lambda_{on}) P(r_1, \lambda_{off})} \right] + \ln \left[ \frac{\beta_{off}(r_1) \cdot \beta_{on}(r_2)}{\beta_{on}(r_1) \cdot \beta_{off}(r_2)} \right] + 2 \cdot \Delta r \cdot [\alpha_{off}^{rest}(R) - \alpha_{on}^{rest}(R)] \right\} \quad 3.14$$

Der Index 'rest' des Extinktionskoeffizienten  $\alpha$  steht für weitere Bestandteile der Atmosphäre wie Aerosole und Spurengase, wobei aber noch die Querinterferenzen zu anderen Spurengasen zu beachten ist.

Für ein hinreichend kleines Intervall  $[r_1, r_2]$  ohne starke Aerosolgradienten innerhalb diesem Messintervall, ist der Rückstreukoeffizient  $\beta_n$  für  $r_1$  und  $r_2$  annähernd gleich. Wenn beide Wellenlängen spektral hinreichend eng nebeneinander liegen, sind auch die Rückstreukoeffizienten nahezu identisch und somit sind auch hier die Veränderungen entlang der Messstrecke gleich. D.h. bei hinreichend kleinem Intervall und spektraler Differenz ist die Annahme  $\beta(r, \lambda_{on}) \approx \beta(r, \lambda_{off})$  gerechtfertigt, womit auch

$$\frac{d}{dr} \beta(r, \lambda_{on}) \approx \frac{d}{dr} \beta(r, \lambda_{off}) \quad 3.15$$

berechtigt ist. Damit sind die differentiellen Veränderungen der Rückstreukoeffizienten entlang der Messstrecke nahezu Null und der zweite Term in Gl. 3.14 ist zu vernachlässigen.

Der Extinktionskoeffizient  $\alpha$  besteht, wie Gl. 3.4 zeigt, aus drei verschiedenen Komponenten. Mit der gleichen Annahme, zweier spektral hinreichend eng nebeneinander liegen Messwellenlängen, ist auch der Rayleigh- und Mie-Anteil gleich und die Differenz wird zu

$$\alpha(r, \lambda_{on}) - \alpha(r, \lambda_{off}) = N(r) \cdot [\sigma(\lambda_{on}) - \sigma(\lambda_{off})] = N(r) \cdot \Delta \sigma^{rest}(\lambda_{on}, \lambda_{off}). \quad 3.16$$

Werden die beiden Wellenlängen so abgestimmt, dass beide in gleicher Weise von den restlichen (relevanten) Spurengasen absorbiert werden, so wird  $\Delta \sigma^{rest}$  zu Null und

somit ist auch der dritte Term in Gleichung 3.14 zu vernachlässigen. Die vereinfachte DIAL-Gleichung ergibt sich so zu

$$N(R) = \frac{I}{2 \cdot \Delta r \cdot \Delta \sigma(\lambda_{on}, \lambda_{off})} \ln \left\{ \frac{P(r_2, \lambda_{off}) P(r_1, \lambda_{on})}{P(r_2, \lambda_{on}) P(r_1, \lambda_{off})} \right\} . \quad 3.17$$

Die entfernungsabhängige Teilchenzahl  $N(R)$  des Spurengases ist bei hinreichend kleiner Wellenlängendifferenz also nur noch von dem für viele Spurenstoffe bekannten, oft noch druck-, temperatur- und somit höhenabhängigen Streuquerschnitt  $\sigma$  des gesuchten Spurengases und den gemessenen rückgestreuten Intensitäten  $P(R, \lambda_x)$  abhängig.

Sind die Näherungen, dass beide Messstrahlen dieselbe Extinktion durch die Atmosphäre erfahren und die Rückstreukoeffizienten nahezu gleich groß sind, nicht gegeben, so hängen die gemessenen Differenzen der Signale nicht mehr einzig von der Konzentration des zu messenden Spurengases ab und das System ist unterbestimmt. In diesem Fall sind entweder zusätzliche Messungen durchzuführen oder Annahmen über die Zusammensetzung der Atmosphäre zu treffen. Dabei kann die Molekülextinktion durch geeignete Daten, wie Temperatur und Druck, von Sondenaufstiegen korrigiert werden sowie die unterschiedlich starke Rayleigh-Streuung in der Rechnung korrigiert werden. Die Korrektur des Aerosols dagegen gestaltet sich etwas komplexer. In Kapitel 8.1.4 wird dies näher beschrieben.

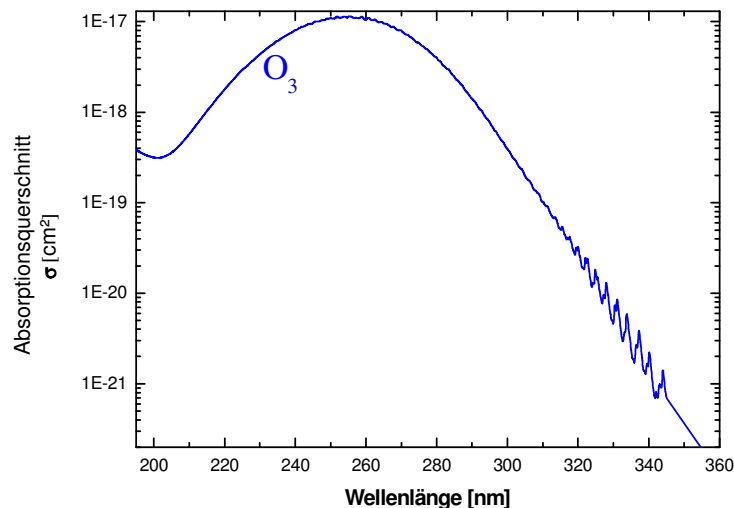
### 4. Messwellenlängen

Für die erfolgreiche Entwicklung eines DIAL-Systems sind verschiedene Kriterien zu beachten. Von zentraler Bedeutung dabei ist die Auswahl der Messwellenlängen. Die wichtigsten Kriterien sind dabei

- der spektrale Bereiche, in welchem der zu untersuchende Spurenstoff absorbiert
- die typische Konzentration des Spurenstoffes
- die sich ergebenden Absorptionskoeffizienten
- die Kreuzkorrelationen mit anderen Spurengasen.

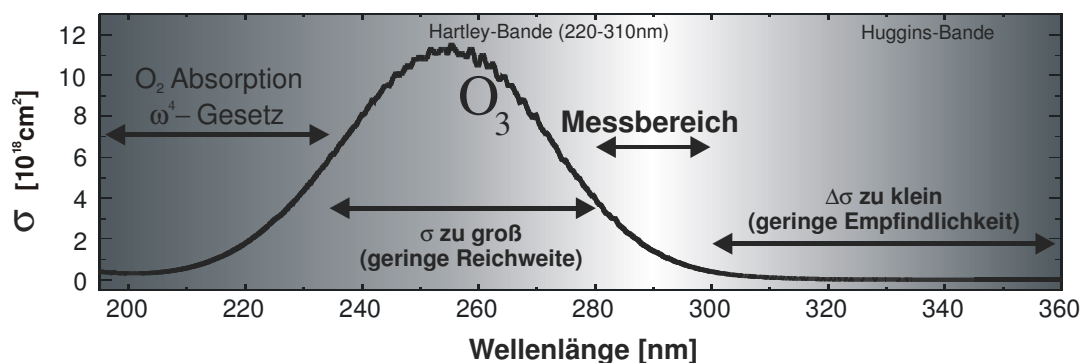
Die intensivste Absorptionsbande von Ozon liegt im ultravioletten Spektralbereich, in der sog. Hartley Bande von 220 bis 310 nm (siehe Abbildung 4-1). In der spektral sich anschließenden Huggins-Bande oberhalb von 310 nm, ist die Absorption sehr viel geringer. In der Stratosphäre werden dennoch Ozonmessungen auch in der Huggins-Bande durchgeführt. Die geringe Absorption und der damit verbundene geringe differentielle Absorptionsquerschnitt  $\Delta\sigma = \sigma_{on} - \sigma_{off}$ , wird durch die im Vergleich zur Troposphäre fast hundertmal höhere Konzentration von etwa 5  $\mu\text{mol/mol}$ , wieder kompensiert.

Das für Messungen von stratosphärischem Ozon am DLR entwickelte DIAL-System OLEX (Ozon Lidar Experiment), welches seit mehreren Jahren sehr erfolgreich operationell eingesetzt wird, verwendet 308 nm als Onlinewellenlängen und 355 nm als Referenzwellenlänge ('offline'). Daraus ergibt sich ein differentieller Absorptionsquerschnitt von etwa  $1,4 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2$ . Als Emmitter dienen ein XeCl-Excimer Laser bei 308 nm und ein frequenzverdreifachter Nd:YAG-Laser. Die große Wellenlängendifferenz von fast 47 nm stellt in der meist sauberen Luft der Stratosphäre nur ein geringes Problem dar. Für die sehr viel stärker durch Aerosol belastete Troposphäre gilt dies aber nicht. Hier muss darauf geachtet werden, dass, wie in Kapitel 3 gezeigt, die Wellenlängen, auf Grund der wellenlängenabhängigen Extinktions- und Rückstreuoeffizienten des Aerosols, spektral sehr dicht beieinander liegen.



**Abbildung 4-1:** Der Absorptionskoeffizient  $\sigma$  von Ozon bei einer Temperatur von 298 K als Funktion der Wellenlänge [Daumont et al. 1992]. Die spektrale Auflösung beträgt 0,01 nm.

Betrachtet man den Verlauf der Ozonabsorption, wie in Abbildung 4-1 und Abbildung 4-2 dargestellt, so kann in einer groben Abschätzung davon ausgegangen werden, dass der Bereich über 300 nm, aufgrund der geringen differentiellen Absorption, für Messungen in der Troposphäre ausscheidet. Der kurzwelligere UV-Bereich ab etwa 230 nm abwärts, steht aufgrund der erhöhten Rayleighstreuung ( $\omega^4$ -Gesetz), der in diesem Bereich sehr stark zunehmenden Absorption durch Sauerstoff und der damit verbundenen geringen Reichweite des Messsystems, auch nicht zur Verfügung. Im Maximum der Ozonabsorption, also im Bereich von 230 bis etwa 280 nm, ist der Absolutwert der Absorption so hoch, dass bedingt durch die optische Dicke wiederum die Reichweite des Systems sehr stark reduziert würde. Aufgrund dieser Vorüberlegungen kommt für Ozonmessungen nur mehr der spektrale Bereich von etwa 280 bis 300 nm in Betracht.



**Abbildung 4-2:** DIAL-Messbereich für Ozon in der Troposphäre

Allerdings ist dabei zu beachten, dass noch weitere Spurenstoffe in diesem Bereich absorbieren. Die beiden wichtigsten sind Schwefeldioxid  $\text{SO}_2$  und Stickstoffdioxid  $\text{NO}_2$  (siehe Abbildung 4-3). Da die Absorption von  $\text{NO}_2$  über den gesamten Bereich von 280 -300 nm im Vergleich zu Ozon, um weniger als 2,2 % variiert, was einem

Anstieg um  $0,768 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2$  und somit einem sehr geringen differentiellen Absorptionsquerschnitt entspricht, kann dieses vernachlässigt werden. Der Einfluss von  $\text{SO}_2$  dagegen, kann nicht mehr ignoriert werden, da die Absorption von  $\text{SO}_2$  eine stark ausgeprägte Wellenlängenabhängigkeit zeigt und der Absolutwert in der gleichen Größenordnung wie der von Ozon liegt. Hinzu kommt, dass die typische Konzentration von  $\text{SO}_2$  in Mitteleuropa in Ballungsgebieten mit  $5 - 100 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (im Winter bis zu  $400 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) ähnlich denen von Ozon ist. Allerdings sind heutzutage in den meisten europäischen Industrienationen dank der eingesetzten Filter in Industrieanlagen und ähnlichen abgasreduzierenden Maßnahmen Ende des letzten Jahrhunderts, in vielen Regionen die  $\text{SO}_2$ -Werte deutlich geringer als die von Ozon. Es gibt aber dennoch Länder, in denen sich solche Maßnahmen bisher nicht durchsetzen konnten. Hierbei ist China der weltweit größte  $\text{SO}_2$ -Emitter, gefolgt von Mexiko, Brasilien und Korea, um nur die wichtigsten Länder zu nennen. Auch einige osteuropäische Länder haben immer noch einen hohen  $\text{SO}_2$ -Ausstoß. Der größte Anteil an natürlichen  $\text{SO}_2$ -Emissionen, wird durch Vulkanismus verursacht.

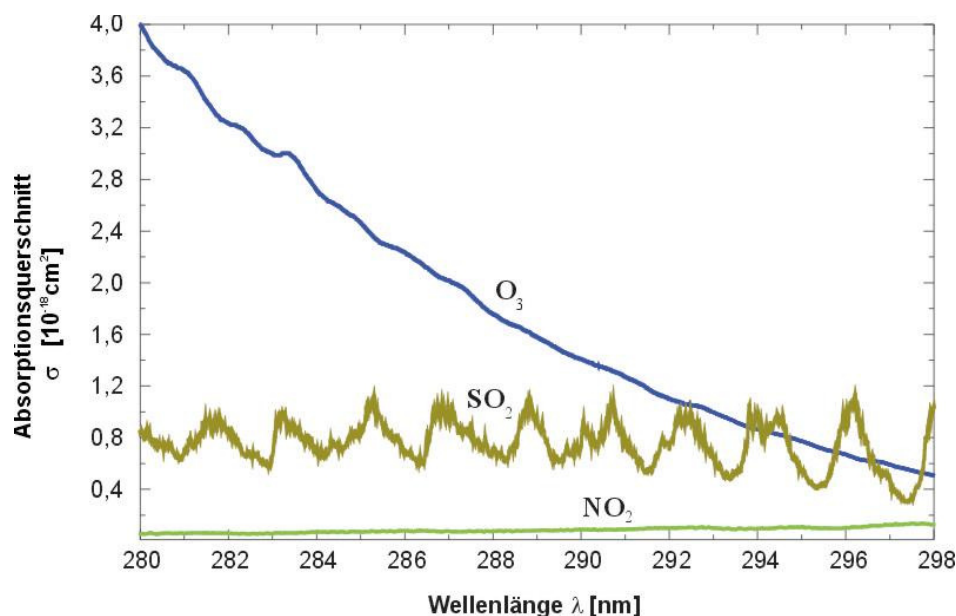


Abbildung 4-3: Dargestellt ist der Absorptionskoeffizient von Ozon [Daumont et al. 1992], Schwefeldioxid [Vandaele 1994] und Stickstoffdioxid [Schneider et al. 1986] im Bereich von 280 nm bis 298 nm.

Um die Abhängigkeit der Ozonmessung von der Schwefeldioxidkonzentration zu minimieren, werden beide Messwellenlängen so gewählt, dass sie in gleicher Weise durch  $\text{SO}_2$  absorbiert werden. Somit entsteht bei einer eventuell vorhandenen Schwefeldioxidbelastung in der gemessenen Atmosphäre kein Beitrag zum absoluten differentiellen Absorptionsquerschnitt und die  $\text{SO}_2$ -Konzentration kann in der Messung vernachlässigt werden.

Die Flanken der  $\text{SO}_2$ -Absorptionskurve (Abbildung 4-3) werden dabei gemieden und nur Bereiche in Betracht gezogen, in denen der Absorptionsquerschnitt nicht oder nur gering schwankt. Um dies im späteren DIAL-System realisieren zu können, ist es

notwendig, eine stabile und spektral schmalbandige Lichtquelle mit einer Breite von nur wenigen Zehnteln Nanometern einzusetzen.

$\lambda_{\text{on}}$ nm	$\lambda_{\text{off}}$ nm	$\Delta\lambda$ nm	$\Delta\sigma_{\text{Ozon}}$ $10^{-19}\text{cm}^2$	$\Delta\sigma_{\text{SO}_2}$ $10^{-19}\text{cm}^2$	Referenz
272,2	291,65	19,45	58,16	-0,05	[Durieux E. 1998]
277,6	280,9	3,3	12,01	0,02	[Weitkamp C. 1992]
277,6	282,7	5,1	18,21	-0,09	[Weitkamp C. 1992]
277,6	284,1	6,5	21,9	-0,78	[Weitkamp C. 1992]
278,6	279,5	0,9	3,15	-0,02	[Weitkamp C. 1992]
278,7	286,4	7,7	23,13	-0,01	[Wallinder E. 1997]
278,8	282,9	4,1	13,77	1,45	[Weitkamp C. 1992]
280,9	282,7	1,8	6,19	0,11	[Goers U.-B. 1995, Weitkamp C. 1992]
280,9	288,3	7,4	19,86	-0,09	[Weitkamp C. 1992]
280,9	289,6	8,7	21,99	-0,06	[Weitkamp C. 1992]
282,4	286,3	3,9	10,02	0,036	[Zwozdziak J. 2001, Milton M.J.T. 1998]
282,7	284,1	1,4	3,69	-0,68	[Fritzsche K. 1997, Weitkamp C. 1992]
282,9	286,4	3,5	8,83	-0,05	[Weitkamp C. 1992]
283	287	4	9,9	-2,59	[Frejafon E. 1998]
284,1	289,6	5,5	12,1	0,85	[Weitkamp C. 1992]
285	290	5	10,38	1,2	[Ancellet G. 1987]
285,5	288	2,5	5,85	1,86	[Fritzsche K. 1996]
286	291	5	9,49	-0,92	[Proffitt M.H. 1999]
286	298,3	12,3	17,2	-1,84	[Browell E.V. 1985]
286	300	14	18,19	-5,67	[Browell E.V. 1983]
286,4	288,3	1,9	4,3	-0,36	[Weitkamp C. 1992]
286,4	289,6	3,2	6,61	-0,21	[Weitkamp C. 1992]
288	291	3	4,82	-0,82	[Proffitt M.H. 1999]
288,15	292,27	4,12	6,49	-2,64	[Hoff R.M. 1995]
288,2	299,5	11,3	12,85	3,71	[Browell E.V. 1996]
288,8	294,5	5,7	7,87	1,46	[Pelon J. 1982]
292,3	294	1,7	1,99	-0,15	[Grant W.B. 1975]
294	300	6	4,66	-3,04	[Molero F. 1999]
289	299,1	10,1	11,3	6,16	--
277,1	291,9	14,8	39,13	-0,22	++

-- Ramanverschobene vierte harmonische eines Nd:YAG Lasers (266 nm): Online: erste Stokes in D<sub>2</sub>-Zelle  
Offline: erste Stokes in H<sub>2</sub>-Zelle

++ Ramanverschobener KrF-Laser (248 nm): Online: erste Stokes in H<sub>2</sub>-Zelle  
Offline: erste Stokes in D<sub>2</sub>-Zelle

**Tabelle 4-1: Für DIAL-Messungen verwendete Wellenlängenpaare zwischen 270 und 300 nm die von verschiedenen Autoren vorgeschlagen oder verwendet wurden. Die diff. Absorption von O<sub>3</sub> wurde von Daumont et al., 1992 und SO<sub>2</sub> aus den Daten von A.C. Vandale (1994) berechnet.**

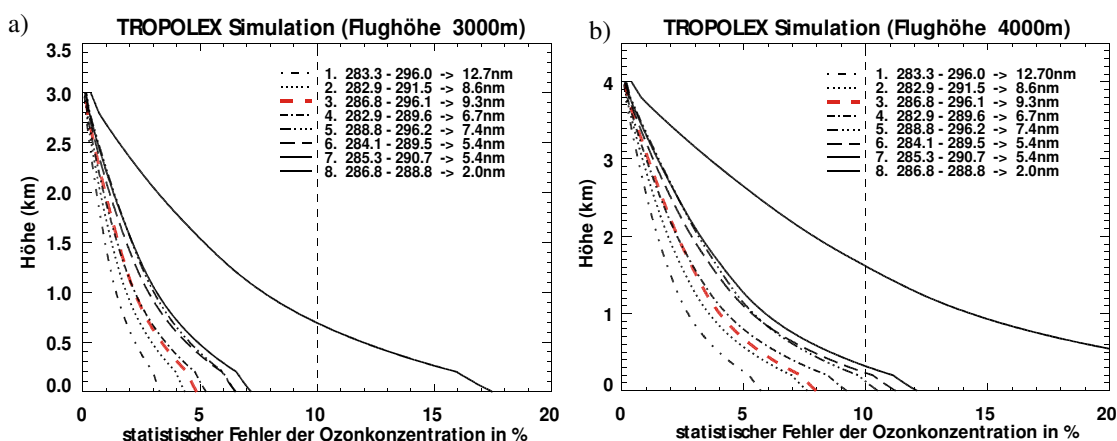
Wie aus Abbildung 4-3 ersichtlich, gibt es mehrere Kombinationen von Wellenlängenpaaren die den oben genannten Kriterien gerecht werden, wobei aber nicht außer Acht gelassen werden darf, dass noch ein Kompromiss zwischen einem

möglichst großen differentiellen Absorptionsquerschnitt und einer möglichst kleinen Wellenlängendifferenz wegen des Aerosoleinflusses zu finden ist.

In der Literatur werden unterschiedliche Kombinationen für O<sub>3</sub>-Messungen angegeben um dabei den SO<sub>2</sub>-Einfluß zu minimieren. In Tabelle 4-1 werden die von Weitkamp et al. [1992] bevorzugt verwendeten Wellenlängenpaare mitsamt den zugehörigen differentiellen Absorptionsquerschnitten für O<sub>3</sub> und SO<sub>2</sub> aufgelistet.

Auf Grund der Tatsache, dass die Anzahl der möglichen Kombinationen sehr groß ist, war es notwendig erst einmal ein DIAL-System am Computer zu simulieren, um die verschiedenen Kombinationen in Bezug auf Reichweite und Messgenauigkeit zu vergleichen. Darüber hinaus gibt die Simulation aber noch Anhaltspunkte über den Einfluss der Laserparameter wie Repetitionsrate und Pulsenergie.

Als Basis für die Simulationen diente eine US-Standardatmosphäre (1976) mit einem interpolierten Ozonmischungsverhältnis von 27 nmol/mol am Boden und 39 nmol/mol in 4 km Höhe (Abbildung 4-4). Weitere Simulationen wurden mit unterschiedlichen, homogenen Ozonkonzentrationen vorgenommen (Abbildung 4-5). Es wurde eine Fluggeschwindigkeit von 45 m/s und eine Flughöhe je nach Simulation von 3000 m, 3200 m und 4000 m MSL (Mean Sea Level) angenommen. Diese Werte wurden in Bezug auf eine Cessna 208 Grand Caravan festgelegt, auf der das System später eingesetzt werden soll.



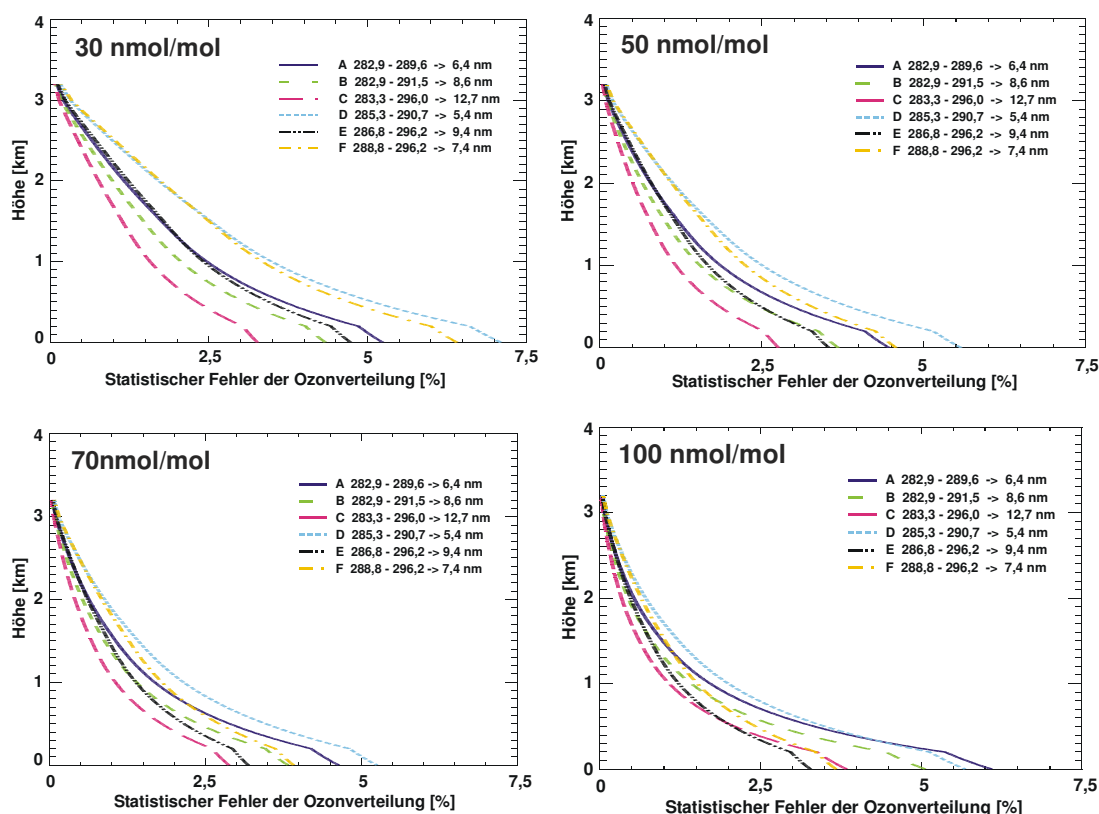
**Abbildung 4-4: Simulation des statistischen Fehlers bei verschiedenen Wellenlängenpaaren und unterschiedlichen Flughöhen. Die angegebenen Zahlenwerte beziehen sich auf  $\lambda_{on}$ ,  $\lambda_{off}$  und  $\Delta\lambda$ .**

Auf Grund der Abnahme des Rückstreusignals proportional zu  $r^2$  ist eine Zunahme des statistischen Fehlers mit steigender Entfernung vom System zu erwarten, was die Simulationen auch widerspiegeln. Die systematischen Fehler wie Genauigkeit der Wellenlängen, Temperaturdifferenzen, Querinterferenzen zu anderen Spurengasen und Aerosolextinktion werden dabei nicht beachtet. Diese werden in Kapitel 8.1 ausführlicher behandelt.

Mit einem anderen Laser (XeCl-Excimer) wurde die Erfahrung gemacht, dass es oberhalb von etwa 3000 m auf Grund der geringen Luftdichte zu Hochspannungsüberschlägen kommen kann. Zum Zeitpunkt der Simulation war nicht klar, wie sich der vorgesehene Nd:YAG Laser und die Detektoren (PMT) bei niedrigem Umgebungsdruck verhalten. Um dem Rechnung zu tragen, wurden deshalb

eher konservative Höhen um die 3000 m in der Simulation angenommen. Um die Zunahme des Fehlers mit der Höhe zu verdeutlichen, ist in Abbildung 4-4 b der statistische Fehler bei einer angenommenen Flughöhe von 4000 m dargestellt.

Die in den Simulationen verwendeten Wellenlängenpaare setzten sich aus verschiedenen möglichen Kombinationen von Wellenlängen zusammen, die als Ensemble die oben beschriebenen Kriterien wie z. B. die Korrelation zu  $\text{SO}_2$  erfüllen.



**Abbildung 4-5:** DIAL-Simulation des statistischen Fehlers mit homogener Ozonverteilung von 30 bis 100 nmol/mol und den Systemparametern aus Tabelle 4-2.

Auf der Empfängerseite wurde ein optisches System mit einer Gesamteffizienz von 33 % angenommen und wegen der Dunkelzählrate von kleiner als  $80 \text{ s}^{-1}$ , wurde der Photomultiplier (PMT) als rauschfrei mit einer Quanteneffizienz von 25 % angesetzt. Als Teleskop wurde ein Cassegrain-Teleskop mit einem Durchmesser von 350 mm und einem max. Öffnungswinkel von 4 mrad angenommen, da speziell dieses Teleskop auch später in das DIAL-System integriert werden sollte (siehe Tabelle 4-2).

Das angestrebte Ziel war eine den Verhältnissen in der unteren Troposphäre angepasste Ortsauflösung, bei der Ozon auch noch als Tracer benutzt werden kann. Die vertikale Auflösung wurde deshalb mit 200 m angesetzt und bei einer Mittelungszeit von 30 s entspricht die horizontale Auflösung 1350 m. Dabei wird über 300 Laserschüsse und somit 150 unabhängige DIAL-Messungen gemittelt. In den Simulationen wurden sowohl die Wellenlängen als auch die Pulsenergien des Lasers variiert um so eine optimale Kombination zu finden.



Teleskop	Ø 350 mm, $f=5000$ mm
Transmissionseffizienz (Teleskop, Spiegel, Filter, Linse)	33 %
Quanteneffizienz (PMT)	25 %
Geschwindigkeit (Cessna 208 Grand Caravan)	45 m/s
vertikale Auflösung	200 m
horizontale Auflösung	1350 m (30 s)
Pulsenergie	10 mJ

**Tabelle 4-2: Systemparameter für die Simulationen**

Die Pulsenergie geht mit einem Faktor von  $\sqrt{2}$  ein, weshalb 10 mJ Pulsenergie im UV, bei einer vorgegebenen Repetitionsrate von 10Hz, ein guter Kompromiss zwischen minimalem statistischen Fehler und technischem Aufwand bei der Entwicklung der Laserquelle darstellt. Zum anderen wird aber auch deutlich, dass eine idealerweise kleine Wellenlängendifferenz, einhergehend mit einem geringen differentiellen Absorptionsquerschnitt, zu einer großen Ungenauigkeit in der Messung führt (Abbildung 4-4 Kurve 8). Aus der Simulation mit unterschiedlichen, homogenen Ozonverteilungen (Abbildung 4-5) geht hervor, dass je nach vorhandener Ozonkonzentration unterschiedliche Wellenlängenpaare zu den besten Ergebnissen führen. Daraus ergibt sich die Forderung nach einer Lichtquelle, die möglichst breit durchstimmbar ist, um so die Wellenlängen je nach Gegebenheit variieren zu können. Bezüglich des statistischen Fehlers scheint das Wellenlängenpaar C in Abbildung 4-5 am besten geeignet, hat aber den Nachteil einer sehr großen Wellenlängenseparation, was bei einem starken Aerosolgradienten einen großen systematischen Fehler zur Folge hat.

Auf Grund dieser Simulationen wurden für die Messungen die Wellenlängenkombination von 286,81 und 296,13 nm ausgewählt (Kurve 3 in Abbildung 4-4, Kurve E in Abbildung 4-5). Diese stellt einen guten Kompromiss zwischen geringer Wellenlängendifferenz und großem differentiellen Absorptionsquerschnitt dar, wobei noch zusätzlich in der  $\text{SO}_2$ -Absorption bei beiden Wellenlängen spektral ein relativ breites Plateau mit geringen Absorptionsvariationen vorhanden ist. Die differentielle Absorption  $\Delta\sigma$  von  $\text{O}_3$  beträgt bei diesen Wellenlängen  $13,9 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2$ , bei  $\text{NO}_2$  sind es  $0,3 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2$  und bei  $\text{SO}_2$   $0,1 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2$  (siehe Tabelle 3-1), wodurch deutlich wird, dass der Einfluss dieser Spurengase auf die Ozonmessung auch bei vorhandenen Konzentrationen in vergleichbaren Größenordnungen wie Ozon nur sehr gering ist ( $\text{SO}_2$  0,72 %,  $\text{NO}_2$  2,16 %).

Mit den Simulationen wurde gezeigt, dass es mit dem ausgewählten Wellenlängenpaar (Tabelle 4-3), der Repetitionsrate des Lasers von 10 Hz und einer Einzelpulsenergie von 10 mJ möglich ist, bei einer Flughöhe von 3200 m MSL den Ozongehalt in Bodennähe mit einem Fehler von weniger als 5 % zu messen und dabei die angestrebte Auflösung von 1350 m horizontal und 200 m vertikal zu erreichen. Voraussetzung dafür ist allerdings eine äußerst frequenzstabile Laserlichtquelle mit einer geringen spektralen Breite von nur wenigen Zehnteln Nanometern.

	Wellenlänge / nm	Absorptionskoeffizienten / $10^{-18} \text{ cm}^2$		
		<b>O<sub>3</sub></b>	<b>SO<sub>2</sub></b>	<b>NO<sub>2</sub></b>
Online	286,81	2,04	1,08	0,074
Offline	296,13	0,65	1,09	0,106
Differenz	9,32	1,39	0,01	0,032

**Tabelle 4-3: Messwellenlängen des TropOLEX mit den zugehörigen Absorptionskoeffizienten.**

### 5. Lasertransmitter

Ein Hauptziel dieser Arbeit war es, einen Lasertransmitter, der den Ansprüchen eines flugzeuggetragenen Ozon-DIAL genügt, zu entwickeln. Wie in Kapitel 4 dargestellt, sollte diese Laserlichtquelle spektral sehr schmalbandig (wenige zehntel Nanometer) sein und im ultravioletten Spektralbereich einem kontinuierlichen Durchstimmbereich von nahezu zwanzig Nanometern besitzen.

Für die Erzeugung von kohärentem Licht in diesem Bereich gibt es grundsätzlich zwei verschiedene Möglichkeiten:

- das aktive Material emittiert direkt im UV (z.B. Ce:LiSAF [Rambaldi et al. 1995])
- das Material emittiert im sichtbaren bzw. nahen Infrarot Bereich und wird über nichtlinearer Frequenzkonversion in den UV-Bereich transformiert

Obwohl in der Vergangenheit auch Farbstofflaser eingesetzt wurden [Burneika et al. 1972, Harris 1969, Byer 1975], ist es allgemein anerkannt, dass für den Flugzeugeinsatz auf Grund der nur begrenzt zur Verfügung stehenden Energie und des knappen Platzes nahezu ausschließlich Festkörperlaser in Betracht kommen.

Ein großer Nachteil für direkt im UV emittierende Laser ist die geringe Effizienz solcher Systeme. Von Rambaldi et al. [1995] wurde z.B. für einen mit der vierten Harmonischen eines Nd:YAG Lasers (266 nm) gepumpten Ce:LiSAF Laser ein Durchstimmbereich von 284 bis 299 nm nachgewiesen mit einer Bandbreite von etwa 0,2 nm. Damit ist gezeigt, dass der notwendige Spektralbereich erreichbar ist, aber u. a. wegen der Erzeugung der vierten Harmonischen, sehr zu Lasten der Gesamteffizienz geht. Deshalb wurde diese Methode für die Erzeugung von kohärenter UV-Strahlung in dieser Arbeit nicht weiter verfolgt und das Augenmerk auf die nichtlineare Frequenzkonversion gelegt.

Bei der Frequenzkonversion werden fast ausschließlich sehr breitbandig durchstimbare Festkörperlaser, wie z.B. Ti:Saphir (660-1180 nm) oder Cr:Alexandrit (720-860 nm) verwendet, die anschließend mittels SHG, SFM (Sum Frequency Mixing) oder ähnlichen nichtlinearen Prozessen ins UV konvertiert werden. Im Vergleich dazu bietet eine auf OPA (engl.: optical parametric amplifier) oder OPO (optisch parametrischer Oszillator) Technologie basierende Lichtquelle, die beispielsweise mit einem frequenzverdoppelten Nd:YAG gepumpt wird, erhebliche Vorteile [Fix et al. 1993]. Diese Vorteile reichen von einem relativ großen spektralen Durchstimmbereich, über die vergleichsweise hohe Effizienz bis hin zu einem sehr kompakten Aufbau.

## 5.1 Optisch parametrische Verstärkung (OPA)

Die optisch parametrische Verstärkung wurde schon sehr früh theoretisch vorhergesagt [Kroll 1962], aber erst nach der Entdeckung des Lasers experimentell nachgewiesen. Konventionelle Lichtquellen sind wegen ihrer geringen Strahlungsintensitäten nicht in der Lage, diese (nichtlinearen) optischen Prozesse anzuregen. Die Faktoren, welche die wesentlichen physikalischen Eigenschaften eines OPA bestimmen, sind die Wellenlänge, die Energie und die Strahlqualität der optischen Pumpe mit Divergenz und spektraler Bandbreite. Zusammen mit den Eigenschaften der verwendeten Kristalle, wie z.B. Akzeptanzbandbreite und –winkel, bestimmen diese u. a. die Effizienz des Systems.

In der linearen Optik kann die Ausbreitung des Lichtes in einem Medium damit beschrieben werden, dass eine Welle, mit der elektrischen Feldstärke  $E$ , durch ein Medium läuft und dabei eine Polarisationswelle  $P$  erzeugt. D.h. die leichten Elektronen werden gegenüber den sehr viel schwereren und damit auch trägeren Kernen ausgelenkt und beginnen mit der eingestrahlten Lichtfrequenz zu oszillieren. Es entsteht so durch die schwingenden (Hertz'schen) Dipole eine neue elektromagnetische Welle, die mit der Frequenz der eingestrahlten Welle schwingt aber aufgrund der Trägheit der Elektronen gegenüber der ursprünglichen Welle phasenverschoben ist. Diese Phasenverschiebung macht sich makroskopisch in einer veränderten Lichtgeschwindigkeit bemerkbar, was durch den Brechungsindex  $n$  beschrieben wird. Der materialspezifische Absorptionsgrad  $\alpha$  gibt dabei den Grad der Abschwächung der Welle an. Beide, der Brechungsindex und der Absorptionsgrad, sind frequenzabhängige Materialkonstanten. Bei entsprechend geringen Bestrahlungsstärken folgen daraus die Erhaltung der Frequenz und das Superpositionsprinzip, welches besagt, dass sich mehrere Wellen ungestört überlagern können.

Wird die Bestrahlungsstärke derart erhöht, dass die Energie der Auslenkung der Elektronen nicht mehr durch ein ideales harmonisches Potential angenähert werden darf, sondern durch ein reales Potential ersetzt werden muss, können neue Frequenzen, wie Oberwellen oder Mischfrequenzen auftreten.

Die Beziehung zwischen der Polarisation  $P$  und einem eingestrahlten Feld  $E$  ergibt die aus den Maxwellgleichungen hervorgehenden Materialgleichungen [Bergmann Schäfer 1993], die im einfachsten linearen Fall die folgende Form besitzt

$$P = \varepsilon_0 \chi E \quad . \quad 5.1.1$$

Hierbei ist  $\varepsilon_0$  die elektrische Feldkonstante und  $\chi$  die elektrische Suszeptibilität (im allg. ein komplexer Tensor  $\chi = \chi_1 + i\chi_2 = (\chi_{ij})$ , mit  $(\chi_{ij})$  als Matrix des 3x3-Tensors). Bei höheren elektrischen Feldstärken treten allerdings auch höhere Ordnungen von  $P$  auf und Gl. (5.1.1) kann als Potenzreihe des elektrischen Feldes  $E$  entwickelt werden. Die Polarisation ergibt sich für verlustfreie Medien so zu

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 \chi \mathbf{E} + \epsilon_0 (\chi' \mathbf{E}) \mathbf{E} + \epsilon_0 ((\chi'' \mathbf{E}) \mathbf{E}) \mathbf{E} + \dots \quad 5.1.2$$

Ist das Medium nicht verlustfrei, so ist der Zeitverlauf von  $\mathbf{P}$  und  $\mathbf{E}$  unterschiedlich und es macht sich eine Phasenverschiebung zwischen  $\mathbf{E}$  und  $\mathbf{P}$  bemerkbar. In diesem Fall ist die Suszeptibilität  $\chi$  nicht nur vom Medium sondern auch vom zeitlichen Verhalten der elektrischen Feldstärke abhängt.  $\chi'$  ist ein Tensor dritter Stufe, also eine 3x3x3-Matrix, die die drei Komponenten der Polarisation und die neun Komponenten der elektrischen Feldstärke miteinander verknüpft. Entsprechend ist  $\chi''$  ein Tensor vierter Stufe.

Wird nun eine einfache ebene monochromatische elektromagnetische Welle mit der Amplitude  $A$ , der Zeit  $t$  und der Kreisfrequenz  $\omega$ , der Form

$$\mathbf{E} = A \cdot \cos(\omega t) \quad 5.1.3$$

eingesetzt, so ergibt sich die Polarisation zu

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 \chi A \cdot \cos(\omega t) + \epsilon_0 (\chi' A) A \cdot \cos^2(\omega t) + \epsilon_0 ((\chi'' A) A) A \cdot \cos^3(\omega t) + \dots \quad 5.1.4$$

Durch einfache, trigonometrische Umformung und unter Berücksichtigung nur der linearen und quadratischen Glieder ergibt sich daraus

$$\mathbf{P} = \epsilon_0/2 (\chi' A) A + \epsilon_0 \chi A \cdot \cos(\omega t) + \epsilon_0/2 (\chi'' A) A \cdot \cos(2\omega t) + \dots \quad 5.1.5$$

$$\mathbf{P} = \mathbf{P}^{(0)}(0) + \mathbf{P}^{(1)}(\omega) + \mathbf{P}^{(2)}(2\omega) + \dots$$

Außer der Grundfrequenz und dem Gleichlichtanteil entstehen noch zusätzliche Frequenzen höherer Ordnung, also neue Wellenlängen. Die Reihe ist eine Taylorentwicklung und endet somit nicht nach den quadratischen Termen, sondern liefert entsprechend viele Beiträge. Die Beiträge höherer Ordnung sind z.B. kubische Terme mit  $\chi''$ , welche u. a. die Frequenzverdreifung und die entartete Vierwellenmischung beschreiben. Zu den quadratischen Effekten mit  $\chi'$  gehört u. a. der Faraday-Effekt [Bergmann Schäfer 1993], die Frequenzverdopplung und die parametrische Verstärkung. Letztere beschreibt die Wechselwirkung von drei elektromagnetischen Wellen. Mit diesem Dreiwellen-Mischprozess besteht die Möglichkeit auf sehr effektive Weise kontinuierlich durchstimmbare kohärente Pulse zu erzeugen, wie sie für einen DIAL-Lasertransmitter notwendig sind. Dieser

Mischprozess ist die Grundlage des in dieser Arbeit entwickelten OPO, welcher auf dem Funktionsprinzip der parametrischen Verstärkung beruht.

Im Wesentlichen findet bei diesem Dreiwellen-Mischprozess eine Überlagerung von zwei verschiedenen Feldern  $E_1(\omega_1) = \hbar\omega_1$  und  $E_2(\omega_2) = \hbar\omega_2$  in einem geeigneten Kristall statt, wodurch ein neues Feld entsteht, das über die Wahl der Einstrahlungsbedingungen festgelegt ist. Dieses Feld besitzt entsprechend den Randbedingungen Frequenzen von  $2\omega_1$ ,  $2\omega_2$  oder  $\omega_1 \pm \omega_2$ , wie leicht aus der Erweiterung von Gl. 5.1.5 zu ersehen ist.

Das bedeutet für die optisch parametrische Verstärkung, dass ein relativ schwaches Signal mit der Frequenz  $\omega_s$  mit einer starken optischen Pumpe der Frequenz  $\omega_p$  überlagert werden kann und dabei die eingestrahlte Signalfrequenz verstärkt wird. Zusätzlich wird, quasi als Nebenprodukt, auf Grund der Energieerhaltung, noch eine dritte Welle mit  $\omega_i$  erzeugt, die sog. Idlerwelle. Diese drei Wellen  $E_x(\omega_x) = \hbar\omega_x$  sind über die Beziehungen

$$\begin{aligned} E_p(\omega_p) &= E_s(\omega_s) + E_i(\omega_i) \\ \hbar\omega_p &= \hbar\omega_s + \hbar\omega_i \\ \omega_p &= \omega_s + \omega_i \end{aligned} \tag{5.1.6}$$

miteinander verknüpft. Gl. 5.1.6 (Energieerhaltung) kann so gedeutet werden, dass ein hochenergetisches Pumpphoton in zwei energieärmere Photonen (Signal und Idler) zerfällt (siehe Abbildung 5-1).

Werden die Fourierkomponenten der eingestrahlten Felder in Abbildung 5-1 betrachtet

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \frac{1}{2} \left[ \vec{E}(\vec{r}, \omega) \cdot e^{i(\vec{k}\vec{r} - \omega t)} + c.c. \right] \tag{5.1.7}$$

so ergeben sich die kartesischen Komponenten der Polarisation  $P_i$  mit  $i = x, y, z$  zu

$$P_i(\vec{r}, \omega_p) = \epsilon_0 g \sum_{j,k} d_{ijk} E_j(\vec{r}, \omega_s) E_k(\vec{r}, \omega_i) e^{i(\vec{k}_s + \vec{k}_i)\vec{r}} \quad . \tag{5.1.8}$$

Dabei ist  $g$  der Entartungsfaktor [Yariv & Yeh 1984] mit

$$g = \begin{cases} 1 & \text{wenn } \omega_i = \omega_s \quad (SHG) \\ 2 & \text{wenn } \omega_i \neq \omega_s \end{cases} \quad \text{und} \quad d_{ijk} = \frac{\chi_{ijk}}{g} \quad .$$

Aufgrund von Kristallsymmetrien der nlo aktiven Medien, wird die Anzahl der tatsächlichen Elemente des nichtlinearen Tensors dritter Stufe  $d_{ijk}$  in der Regel deutlich verringert und in der Literatur sind für fast alle Symmetrieklassen auch dessen von Null verschiedene (materialabhängigen) Werte zu finden (z. B. [Dmitriev, 1991]). Für diesen Dreiwellen-Mischprozess kommen prinzipiell alle nichtsymmetrischen Kristalle in betracht.

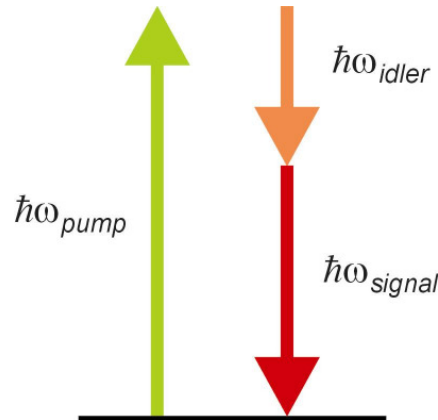


Abbildung 5-1: Photonenbild der parametrischen Verstärkung

Allerdings muss für jede Frequenzkomponente die Wellengleichung, die aus den Maxwellgleichungen für unmagnetisierte Medien hergeleitet wird

$$\nabla^2 \bar{E} - \mu_0 \sigma \frac{\partial}{\partial t} \bar{E} - \mu_0 \varepsilon \frac{\partial^2}{\partial t^2} \bar{E} = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \bar{P}^{(2)} \quad 5.1.9$$

$\mu_0$ : Permeabilitätskonstante des Vakuums

$\varepsilon$ : Dielektrizitätskonstante des Vakuums

$\sigma$ : Leitfähigkeit

erfüllt sein. Dabei dient die Polarisation  $\bar{P}^{(2)}$  als Quellterm.

Für den Fall einer ebenen, monochromatischen Welle, die sich in z-Richtung ausbreitet, ist das resultierende Feld

$$E(z, t) = \sum_j E_j(z) = \sum_j E_j(z) e^{i(\omega_j t - k_j z)} \quad . \quad 5.1.10$$

Aufgrund der hier in Betracht kommenden Wellenlängen, der verwendeten Intensitäten und Pulslängen im Nanosekundenbereich, ist die Annahme einer geringen Variation der Amplitude in z-Richtung (Gl. 5.1.11) und damit die Anwendung der sog. 'slowly varying field approximation' gerechtfertigt. Es gilt

$$\left| k_j \frac{\partial E_j}{\partial z} \right| \gg \left| \frac{\partial^2 E_j}{\partial z^2} \right| \quad . \quad 5.1.11$$

Mit der Wellenvektordifferenz  $\Delta k$  (phase mismatch), für die gelten muss

$$\Delta k = k_p - k_s - k_i \quad 5.1.12$$

und dem Absorptionskoeffizienten  $\alpha_j = \mu_0 \sigma_j c / (2n)$ , der die linearen Verluste im Kristall beschreibt, ergeben sich dann unter Vernachlässigung der Effekte der Gruppengeschwindigkeitsdispersion, die folgenden gekoppelten Amplitudengleichungen als Lösung für Gl. 5.1.9

$$\begin{aligned} \frac{\partial E_s}{\partial z} + \alpha_s E_s &= i \frac{\omega_s d_{eff}}{n_s c} E_p E_i^* \cdot e^{i\Delta k z} \\ \frac{\partial E_i}{\partial z} + \alpha_i E_i &= i \frac{\omega_i d_{eff}}{n_i c} E_p E_s^* \cdot e^{i\Delta k z} \quad . \\ \frac{\partial E_p}{\partial z} + \alpha_p E_p &= i \frac{\omega_p d_{eff}}{n_p c} E_s E_i \cdot e^{-i\Delta k z} \end{aligned} \quad 5.1.13$$

Wenn die Orientierung der Kristallachsen und der Felder  $\vec{E}(\vec{r}, t)$  im Koordinatensystem bekannt sind, erhält man eine skalare Größe, den effektiven nichtlinearen Koeffizient  $d_{eff}$ . Er beschreibt für eine gegebene Anordnung die Kopplung der Felder und ist abhängig von der Orientierung des Kristalls und der Polarisation der eingestrahlten Felder. Die Amplitudengleichungen dagegen beschreiben die Wechselwirkung der drei Felder untereinander beim Durchgang durch den Kristall.

Wie in Gl. 5.1.13 zu sehen ist, sind die Ausdrücke für Signal und Idler durch Vertauschen der Indizes ineinander überzuführen. Es ist daher nicht eindeutig festgelegt, welche der entstehenden Welle mit Idler und welche mit Signal zu bezeichnen ist. In der Praxis ist es üblich, den Strahl mit der kürzeren Wellenlänge mit Signal zu bezeichnen.

Für die Annahme, dass beim Durchgang durch den Kristall kein Abbau der Pumpwelle erfolgt, lassen sich die gekoppelten Amplitudengleichungen analytisch lösen [z.B. Byer 1975]. Diese Annahme ist zwar im Falle von Pulsen im



Nanosekundenbereich nicht zutreffend, aber es lassen sich doch einige wichtige Eigenschaften der parametrischen Verstärkung damit erklären.

Mit der Kristalllänge  $L$ , der Pumpintensität  $I_p$  und der Annahme, dass zu Beginn das elektrische Feld für Idler  $E_i(0)$  gleich Null ist, lässt sich bei einem Kristalldurchgang die Verstärkung der Leistung (single pass power gain) wie folgt berechnen [Byer 1975]:

$$G(\Delta k) \equiv \left| \frac{E_s(L)}{E_s(0)} \right|^2 - 1 = \Gamma^2 L^2 \frac{\sinh^2(gL)}{(gL)^2} \quad 5.1.14$$

mit

$$\Gamma^2 = \frac{2\omega_s \omega_i |d_{eff}|^2 I_p}{n_p n_s n_i \epsilon_0 c^3} \quad \& \quad g = \sqrt{\Gamma^2 - \left(\frac{\Delta k}{2}\right)^2} \quad .$$

Das Maximum der Verstärkung  $G(\Delta k)$  wird bei perfekter Phasenanpassung  $\Delta k = 0$  erreicht. Für den Fall einer kleinen Verstärkung ( $L^2 \Gamma^2 < \pi$ ) kann gezeigt werden [Harris 1969], dass bei einer Phasenfehlanspassung von  $\Delta k_{0,5} \approx \pm 0,886 \frac{\pi}{L}$  der Wert der Verstärkung bereits auf die Hälfte abgefallen ist.

Ursachen für Phasenfehlanspassung sind unter anderem, ein falsch eingestellter Phasenanpassungswinkel  $\delta$ , Temperaturänderungen, sowie die endliche Bandbreite und die Divergenz der Pumpstrahlung. Auch die spektrale Breite der erzeugten Strahlung und eine inhomogene Temperaturverteilung sorgen für eine Abweichung vom Ideal  $\Delta k = 0$ . Wird  $\Delta k$  in einer Reihe mit diesen Parametern, um  $\Delta k(0)$  entwickelt, so ergibt sich:

$$\begin{aligned} \Delta k = \Delta k(0) + \frac{\partial \Delta k}{\partial \delta} \Delta \delta + \frac{\partial \Delta k}{\partial \omega_s} \Delta \omega_s + \frac{\partial \Delta k}{\partial \omega_p} \Delta \omega_p + \frac{\partial \Delta k}{\partial T} \Delta T \\ + O(\Delta \delta^2, \Delta \omega_s^2, \Delta \omega_p^2, \Delta T^2) \end{aligned} \quad 5.1.15$$

Unter der Voraussetzung, dass die anderen Parameter nicht von der Phasenanpassungsbedingung abweichen, lässt sich so die Akzeptanzbandbreite mit der oben angegebenen Bedingung für  $G/2$  für die jeweiligen einzelnen Parameter bestimmen und lauten dann wie folgt [Dmitriev 1991]:

$$\begin{aligned}
\Delta\delta &= 2 \cdot 0,886 \frac{\pi}{L} \left( \frac{\partial\Delta k}{\partial\delta} \right)^{-1} && \text{Winkelakzeptanz} \\
\Delta\omega_s &= 2 \cdot 0,886 \frac{\pi}{L} \left( \frac{\partial\Delta k}{\partial\omega_s} \right)^{-1} && \text{Verstärkungsbandbreite} \\
\Delta\omega_p &= 2 \cdot 0,886 \frac{\pi}{L} \left( \frac{\partial\Delta k}{\partial\omega_p} \right)^{-1} && \text{Bandbreitenakzeptanz} \\
\Delta T &= 2 \cdot 0,886 \frac{\pi}{L} \left( \frac{\partial\Delta k}{\partial T} \right)^{-1} && \text{Temperaturakzeptanz}
\end{aligned} \tag{5.1.16}$$

Die Beachtung der Akzeptanzbandbreiten spielt u. a. bei der Abschätzung der Effizienz für die Realisierung eines OPA bzw. eines OPO eine Rolle. Dabei ist die Winkelakzeptanz ein Maß für die tolerierbare Divergenz des Pumpstrahls. Ebenso wie die Divergenz der Pumpstrahlung trägt auch die Verstärkungsbandbreite zur spektralen Breite der OPO-Strahlung bei. Die Bandbreitenakzeptanz spielt in dieser Arbeit hauptsächlich für die SFM eine Rolle, da diese die maximal zulässige spektrale Breite der OPO-Strahlung bestimmt. Für den OPA gibt sie die spektrale Breite der Pump- und Signalwelle an. Die Temperaturakzeptanz ist bei der Einstellgenauigkeit der Kristallwinkel von Bedeutung, da hier Temperaturschwankungen mit berücksichtigt werden müssen.

Unter der Annahme eines schmalbandigen Pumplasers, z.B. eines „Injection Seeding“ Systems, kann die spektrale Breite des OPOs durch die Verstärkungsbandbreite (Gl. 5.1.16) abgeschätzt werden. Unter der Annahme, dass  $\Delta\omega_p \sim 0$  ist, folgt wegen der Energieerhaltung des parametrischen Prozesses, dass  $\Delta\omega_s = -\Delta\omega_i$ . Somit ergibt sich

für die Ableitung von  $\left( \frac{\partial\Delta k}{\partial\omega_s} \right)$  folgendes:

$$\left( \frac{\partial\Delta k}{\partial\omega_s} \right) = \frac{\partial}{\partial\omega_s} (k_p - k_s - k_i) = \frac{1}{c} \left( n_i - n_s + \omega_s \frac{\partial n_s}{\partial\omega_s} - \omega_i \frac{\partial n_i}{\partial\omega_i} \right) \equiv \frac{\beta}{c} \tag{5.1.17}$$

Die reale spektrale Breite der im parametrischen Verstärker erzeugten Signalstrahlung ist unter der Voraussetzung, dass nur eine endliche spektrale Breite der Signalstrahlung zur Fehlanpassung beiträgt, gleich der Verstärkungsbandbreite:

$$|\Delta\nu_s| = \frac{2\pi c \cdot 0,886}{L\beta} \tag{5.1.18}$$

Einen zusätzlichen Beitrag zur spektralen Breite der Signalstrahlung liefert die Divergenz der Pumpstrahlung, solange diese kleiner als die Winkelakzeptanz ist  $\varphi < \Delta\delta$  :

$$|\Delta\nu_s|_{div} = \frac{\omega_p}{\beta \cdot c} \cdot \frac{\partial n_p}{\partial \delta} \Delta\delta \quad . \quad 5.1.19$$

Die in Gl. 5.1.12 geforderte Wellenvektordifferenz von  $\Delta k = 0$  ist eine notwendige Konsequenz aus der Impulserhaltung. Wie gezeigt wurde ist die Effizienz des Systems umso geringer, je weiter von dieser Bedingung abgewichen wird. Für kollineare Wellen gilt  $k = n\omega/c$ , woraus sich die folgende Beziehung ableitet

$$n_p \omega_p = n_s \omega_s + n_i \omega_i \quad . \quad 5.1.20$$

Mit der Energieerhaltung (Gl. 5.1.6) folgt dann

$$\omega_s = \omega_p \frac{n_p - n_i}{n_s - n_i} \quad . \quad 5.1.21$$

Voraussetzung um diese Bedingung, die sog. Phasenanpassung, erfüllen zu können, ist ein optisch anisotropes Medium. In einem isotropen Medium ist aufgrund der normalen Dispersion, dies nicht realisierbar. Um die Brechungsindizes  $n_x$  zu variieren bzw. anzupassen, gibt es verschiedene Möglichkeiten:

- Variation der Temperatur des Kristalls
- Anlegen eines äußeren elektrischen Feldes
- die Phasengeschwindigkeiten durch z. B. periodisch gepolte Kristalle kann im Mittel zur Übereinstimmung gebracht werden (Quasi Phasenanpassung, QPM) [Armstrong et al. 1962]
- der Winkel des Kristalls kann so eingestellt werden, dass eine Phasenanpassung möglich ist [Giordmaine 1962, Maker et al. 1962].

In dieser Arbeit wurde die Winkelphasenanpassung realisiert, da sie eine rasche Anpassung ermöglicht, sehr einfach zu handhaben ist und zudem noch einen sehr großen spektralen Durchstimmbereich zulässt.

## 5.2 Optisch parametrischer Oszillator (OPO)

Um die bei einem einzigen Durchgang durch einen parametrischen Verstärker erzielte Konversion noch zu steigern und eine größere Ausbeute an Signal- und Idlerstrahlung zu erzeugen, wird die gewonnene Strahlung mit einem Resonator, der im einfachsten Fall aus zwei Spiegeln besteht (siehe Abbildung 5-2) zurückgekoppelt. Ab einer bestimmten Schwelle, bei der die Verstärkung so hoch ist, dass die Verluste durch den Resonator kompensiert werden, ist es dann möglich, sehr effizient Signal- und Idlerstrahlung aus der Pumpstrahlung zu konvertieren.

Der Resonator kann sowohl für Signal und Idler, DRO (doubly resonant OPO), als auch nur für eine der beide Wellen, SRO (single resonant OPO), resonant sein. Der SRO ist technisch einfacher zu realisieren, da die Anforderungen an die Spiegel und den Resonator nicht so hoch sind und der maximale Wirkungsgrad auf Grund des Auftretens von Rückkonversion beim DRO bis zu einem Faktor zwei größer ist [Bjorkholm 1971]. Zusätzlich weist der DRO oft noch starke Fluktuationen in der Ausgangsleistung auf. Allerdings ist die Schwelle beim SRO um einen Faktor zwei höher.

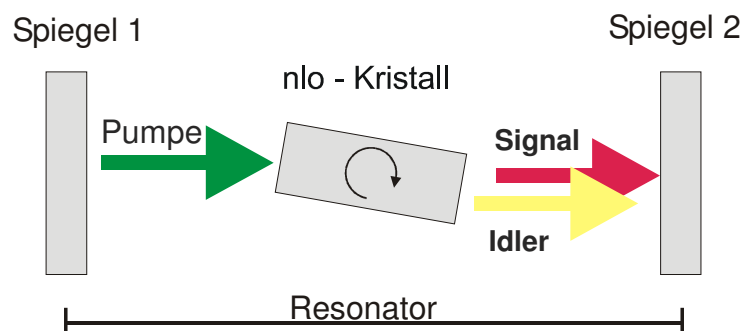


Abbildung 5-2: Schematischer Aufbau eines OPO

Da für ein DIAL recht große Pulsenergien und zusätzlich für ein flugzeuggetragenes System ein stabiler Aufbau benötigt werden, überwiegen hier die Vorteile des SRO gegenüber einem DRO. Um die Konversionseffizienz des OPO zu erhöhen, wird auch der Pumpstrahl reflektiert, um so einen Doppeldurchgang durch den Kristall zu bewirken. Durch diesen Doppeldurchgang wird die effektiv wirksame Kristalllänge verdoppelt und somit die Schwelle gesenkt und die Effizienz erhöht [Bjorkholm 1971]. Mit KTP-Kristallen konnte bei OPO Vergleichen in dieser Arbeit eine Abnahme der Schwellenergie um einen Faktor von annähernd drei beobachtet werden.

Bei hinreichend großer Pumpenergie ist es möglich, den OPO mit unkollimierter Strahlung und somit in einer Plan-Plan Konfiguration zu betreiben. Das hat den

Vorteil, dass bei einer Winkelphasenanpassung des Kristalls, der Resonator wegen des parallelen Strahlversatzes durch den Kristall, nicht nachjustiert werden muss.

Eine sehr viel ausführlichere Beschreibung des OPO ist u. a. bei Yariv [1991] zu finden. Ohne näher auf die Theorie einzugehen, lassen sich jedoch einige allgemeine Aussagen über die Eigenschaften von OPO's und die verwendeten Kristalle treffen. Z. B. lässt sich mit einem kurzen Resonator ein höherer Wirkungsgrad erzielen als mit einem Längen, da die Einschwingzeit kürzer und somit die Schwellenergiedichte niedriger ist und weil die Anzahl der Umläufe während eines Pulses höher ist. Bei den verwendeten Kristallen ist der effektive nichtlineare Koeffizient  $d_{eff}$  sehr entscheidend, da dieser quadratisch in die Energiedichte eingeht. Ebenso wichtig für die Effizienz ist die Länge des Kristalls, welche auch quadratisch eingeht. Eine gewisse minimale Kristalllänge ist notwendig, aber diese kann nicht beliebig ausgedehnt werden, da sie nach oben hin durch den sog. walk-off Winkel und dem damit verbundenen geometrischen auseinander laufen von Pump- und Signalwelle begrenzt ist.

In nlo aktiven Kristallen ist im Allgemeinen die Richtung des Wellenvektors  $\vec{k}$ , also die Ausbreitungsrichtung nicht identisch mit dem Energiefluss, dem Poyntingvektor  $\vec{S} = \vec{E} \times \vec{H}$ . D.h. für doppelbrechende, optisch einachsige Kristalle sind  $\vec{k}$  und  $\vec{S}$  für ordentliche Strahlen parallel, laufen aber für außerordentliche Strahlen auseinander und schließen dabei den walk-off Winkel ein. Ist der Winkel zwischen der optischen Achse des Kristalls und dem Wellenvektor, der sog. Polarwinkel  $\theta$ , gleich  $0^\circ$  oder  $90^\circ$  so wird der walk-off Winkel zu Null und man spricht von nichtkritischer Phasenanpassung. In allen anderen Fällen von kritischer Phasenanpassung, welche die maximale Kristalllänge im OPO begrenzt. Analoges gilt auch für optisch zweiachsige Kristalle.

Sofern Phasenanpassung möglich ist, ist die Konversionseffizienz im stationären Zustand

$$\eta = 1 - \frac{P_{trans}}{P_{pump}} \quad . \quad 5.2.1$$

Diese Gl. gibt das Verhältnis zwischen der eingestrahnten  $P_{pump}$  und der transmittierten Pumpleistung  $P_{trans}$  an und ist eine Funktion der Schwellüberhöhung  $N$  (Faktor um welchen die Schwellenergie überschritten wird). Mit einem stationären Zustand ist hier der Abbau der Pumpintensität durch Konversion gemeint, bis die Verstärkung in Sättigung geht, also keine Einschwingeffekte mehr vorhanden sind.

Für den Fall, dass  $\Delta k = 0$  ist, kann mit der Annahme einer ebenen Welle die folgende implizite Gleichung für die Verstärkung im Zentrum angegeben werden [Fischer et al. 1977]

$$\eta = \sin^2 \sqrt{\eta N} \quad . \quad 5.2.2$$

Das bedeutet aber, dass mit einer Schwellüberhöhung von  $\left(\frac{\pi}{2}\right)^2$ , theoretische auch eine Konversionseffizienz von 100 % möglich ist. Mit einer Gauß'schen Intensitätsverteilung und einer ebenen Wellenfront des einfallenden Strahls ist theoretisch eine maximale Konversionseffizienz von 71 % bei 6,5 facher Schwellüberhöhung möglich [Bjorkholm 1971]. Mit KDP als OPO-Kristall wurden bereits Konversionseffizienzen von über 70 % realisiert [Bareika et al. 1986]. Je besser die Strahlqualität der Pumpwelle ist, umso größer ist die Konversion dieser innerhalb des Resonators.

Vernachlässigt man die Bandbreite  $\Delta\omega_p$  der Pumpstrahlung, kann aufgrund der Impuls- und Energieerhaltung für die Bandbreite eines OPO's angenommen werden, dass die Bandbreite der Signalstrahlung  $|\Delta\omega_s|$  gleich der Bandbreite der Idlerstrahlung  $|\Delta\omega_i|$  sein muss. Mit der Annahme gleicher Divergenz von Signal- und Idlerstrahlung und einer kollimierten und monochromatischen Pumpwelle ergibt sich so eine homogene Bandbreite

$$\Delta\omega_i = -\Delta\omega_s \approx \frac{2\pi}{L} \left| \frac{\partial \Delta k}{\partial \omega_s} \right|_{\Delta k=0}^{-1} = \frac{2\pi c}{L} \left| n_i - n_s + \lambda_s \frac{\partial n_s}{\partial \lambda_s} - \lambda_i \frac{\partial n_i}{\partial \lambda_i} \right|^{-1}. \quad 5.2.3$$

Hierbei sind  $\lambda_i$  und  $\lambda_s$  die Vakuumwellenlängen von Signal und Idler und  $n_x$  die entsprechenden Brechungsindizes.

Brosnan und Byer [Brosnan et al. 1979] geben eine Abschätzung für die Reduktion der Bandbreite in Abhängigkeit der Anzahl  $p$  der Durchgänge durch das verstärkende Medium wie folgt an

$$\Delta\omega_i(p) \approx \frac{1}{\sqrt{p}} \Delta\omega_i. \quad 5.2.4$$

In dieser Arbeit beträgt die Pulslänge etwa 7ns und die Resonatorlänge ist annähernd 13cm. Damit ist  $p \sim 16$ , was bedeutet, dass die Bandbreite um einen Faktor von vier gegenüber der homogenen Verbreiterung in Gl. 5.2.3 reduziert würde, wobei aber keine Sättigungseffekte berücksichtigt werden.

Mit dem OPO-Verfahren steht somit eine Methode zur Verfügung, die eine effiziente Frequenzkonversion von festfrequenter Strahlung in kontinuierlich durchstimbare Strahlung erlaubt.

### 5.3 OPO-Konfiguration

Ein entscheidendes Kriterium für die erfolgreiche Entwicklung eines OPO ist die Auswahl geeigneter Kristalle. Im Wesentlichen wird diese bestimmt durch

- die Wellenlängen (Transparenzbereich)
- eine mögliche Phasenanpassung

wobei aber noch anderen Faktoren wie z. B. Konversionseffizienz und walk-off Winkel einen Einfluss darauf haben.

Wie bereits in den vorangegangenen Kapiteln beschrieben, ist das Prinzip des OPA sowie des OPO ein Dreiwellenmischprozess, d.h. der notwendige Transparenzbereich der Kristalle muss sowohl die Pumpwellenlänge als auch Signal und Idler umfassen.

Der Transparenzbereich der auf dem Markt zur Verfügung stehenden Kristalle erstreckt sich vom UV bis in den fernen infraroten Spektralbereich (siehe Abbildung 5-3). Je nach Anwendungsgebiet gibt es meist mehrere Kristalle, mit unterschiedlichen Eigenschaften, die für einen bestimmten Zweck in Betracht kommen.

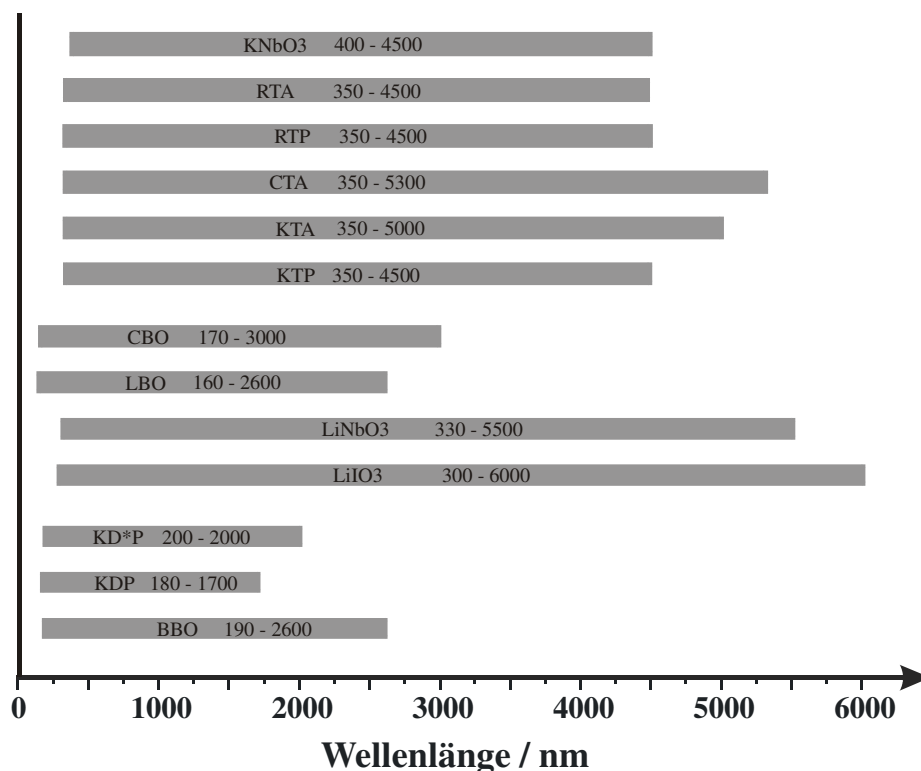
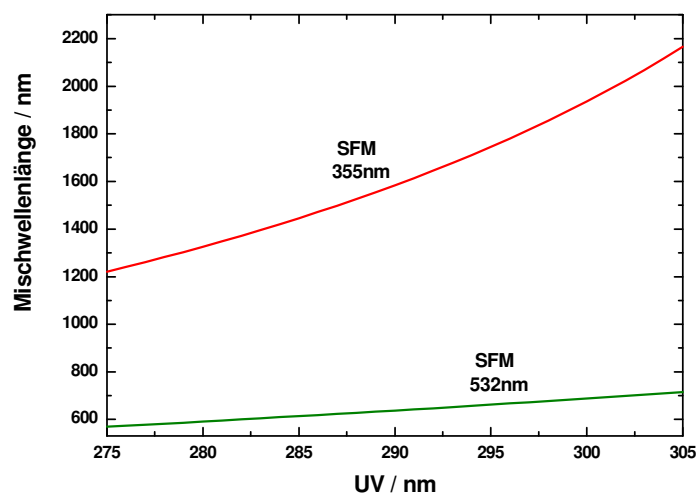


Abbildung 5-3: Transmissionsbereich einiger optisch nichtlinear aktiven Kristalle [Dmitriev 1991, SNLO]

Um auf der Basis eines Nd:YAG-Laser, mit einer Grundwellenlänge von 1064 nm, in den UV Bereich zu gelangen, gibt es verschiedene Möglichkeiten. Mit den gängigen Möglichkeiten der Frequenzvervielfachung stehen hier potentiell vier Ausgangswellenlängen zur Verfügung (1064 nm, 532 nm, 355 nm und 266 nm). Um den erforderlichen spektralen Bereich abzudecken, sind in Tabelle 5-1 einige der möglichen Kombinationen von OPO und SFM aufgelistet. Die zugehörigen zur Mischung notwendigen Wellenlängen sind in Abbildung 5-4 dargestellt.



**Abbildung 5-4: Mischwellenlängen und entstehendes UV bei der Summenfrequenzmischung mit 532 nm bzw. 355 nm**

Zum einen kann der OPO mit 1064 nm optisch gepumpt und die entstehende Signalwelle mit 355 nm gemischt werden (#1, Tabelle 5-1). Energetisch gesehen ist dies wahrscheinlich die günstigste Konfiguration, da bei dieser Wellenlänge sehr viel Pumpenenergie für den OPO und zusätzlich relativ viel Energie für die SFM vorhanden ist. Allerdings ist die Frequenzüberwachung schwierig und es müsste noch zusätzlich ein Faraday-Isolator in den Strahlengang integriert werden, damit keine Pumpstrahlung in den Laser zurückgekoppelt wird. Als mögliche OPO-Kristalle kommen für den gesamten Frequenzbereich (1064 – 5396 nm) hier nur  $\text{LiIO}_3$ , mit einer vergleichsweise schlechten effektiven Konversionseffizienz, und CTA in Betracht. Mit kleinen spektralen Einschränkungen wegen der Phasenanpassung (281,5-300 nm), ist auch KTA noch einzusetzen, wobei  $d_{\text{eff}}$  von CTA hier am größten ist.

Bei einem mit 355 nm gepumpten OPO (#4, Tabelle 5-1), müsste die entstehende Signalwellenlänge mit 532 nm gemischt werden. Energetisch ist dies allerdings nicht vorteilhaft, da der Laser bei 532 nm sehr viel mehr Leistung besitzt als bei 355 nm und als grobe Faustformel von Pumpenergie zu Mischenergie 2:1 angenommen werden kann.

Eine andere Möglichkeit besteht darin, einen OPO mit 532 nm zu pumpen und anschließend die entstandene Signalstrahlung wieder mit 532 nm zu mischen (#2, Tabelle 5-1), was den Vorteil hat, dass vollständig auf eine Verdreifachung der Grundwellenlänge verzichtet werden kann und so die gesamte Energie aus der Verdopplung zur Verfügung steht. Der OPO-Kristall müsste aufgrund der



Pumpwellenlänge und der entstehenden Idlerwellenlänge einen Transmissionsbereich von 532 nm bis etwa 5400 nm besitzen. Unter der Voraussetzung einer möglichen Phasenanpassung und akzeptablen Konversionseffizienz kommt dafür nur KTA, CTA oder  $\text{LiIO}_3$  in Frage.

opt. Pumpe → OPO → SFM → UV					
#	Pumpe	OPO - Wellenlängen	mögliche OPO Kristalle	SFM Wellenlängen	UV
1	1064 nm	1325 – 1936 nm (5396 – 2362 nm)	CTA, $\text{LiIO}_3$ (KTA)	355 nm	280 – 300 nm
2	532 nm	591 – 688 nm (5320 – 2347 nm)	KTA, CTA, $\text{LiIO}_3$	532 nm	
3	532 nm	1325 – 1936 nm (889 – 734 nm)	KTP, KTA, $\text{LiIO}_3$ , BBO	355 nm	
4	355 nm	591 – 688 nm (889 – 734 nm)	KTP, KTA, CTA, $\text{LiIO}_3$ , BBO	532 nm	

**Tabelle 5-1: Übersicht über mögliche Kombinationen zur Erzeugung von UV im Bereich von 280 bis 300 nm auf Basis eines frequenzvervielfachten Nd:YAG-Laser und parametrischer Verstärkung. Die genannten Kristalle besitzen zum einen den notwendigen Transparenzbereich und zum anderen ist eine Phasenanpassung möglich ist.**

Einen guten Kompromiss zwischen den bisher beschriebenen Konfigurationen bezüglich der Pumpenergie und der Auswahl möglicher Kristalle sowie der Frequenzüberwachung bietet #3 Tabelle 5-1. Als Pumpwellenlänge für den OPO wird hier die zweite Harmonische des Nd:YAG (532 nm) eingesetzt und die entstehende Idlerwelle mit 355 nm gemischt. Die daraus resultierende Signalstrahlung liegt bei 734 bis 889 nm. Ein weiteres Argument für diese Konfiguration war neben der Energie auch die relativ einfach mögliche Frequenzüberwachung während des Betriebes im nahen IR-Bereich über die Signalstrahlung. Aus diesen Gründen wurde diese Variante auch bei der Realisierung des Ozon-DIAL's umgesetzt.

Für die Entwicklung dieses UV-OPO müssen die nlo Kristalle für den OPO einen Transmissionsbereich von 532 nm (Pumpwelle) bis 1,9  $\mu\text{m}$  (max. Idlerwelle) und für die anschließende Summenfrequenzmischung von 280 nm bis ebenfalls 1,9  $\mu\text{m}$  besitzen. Zusätzlich sollten beide Kristalle, wegen den im Flugzeug möglichen, großen Temperaturschwankungen, thermisch stabil sein und einen möglichst großen effektiven nichtlinearen Koeffizienten  $d_{\text{eff}}$  besitzen, um eine optimale Konversionseffizienz zu erzielen. Für den OPO erfüllt KTP all diese Voraussetzungen und ist dazu noch sehr gut erhältlich und vergleichsweise kostengünstig.

Mögliche Alternativen zu KTP für die OPO-Anwendung sind unter anderem KTA,  $\text{LiIO}_3$  oder BBO. Alle vier besitzen den nötigen Transmissionsbereich und eine Phasenanpassung ist über den gesamten spektralen Bereich möglich. In der Effizienz ist nur KTA mit KTP vergleichbar, welches aber in der Anschaffung etwa um einen

Faktor drei teurer und dazu noch energetisch weniger stark belastbar ist. BBO und  $\text{LiIO}_3$  haben eine deutlich geringere Konversionseffizienz und  $\text{LiIO}_3$  ist dazu noch stark hygroskopisch. Zu beachten sind auch die notwendigen Winkeleinstellungen bzw. die Winkeldifferenz zwischen der On- und Offlinewellenlänge des Kristalls, da eine zu große Differenz nicht mehr realisierbar ist und eine sehr kleine Differenz zu Einstellungsschwierigkeiten bezüglich der exakten Wellenlänge führt. Eine Gegenüberstellung der wichtigsten Kristallparameter ist in Tabelle 5-2 zu finden.

Kristall	Wellenlänge [nm] Idler {UV (Signal)}	Winkel der Phasen- anpassung	walk-off Winkel	$d_{\text{eff}}$ [pm/V]	$FOM = \frac{d_{\text{eff}}^2}{n_1 n_2 n_3}$ [pm <sup>2</sup> /V <sup>2</sup> ]
KTP Typ II (xz)	1936 {300 (734)}	52,54°	2,97°	3,35	2,00
	1325 {280 (889)}	66,86°	2,20°	3,89	2,78
KTA Typ II (xz)	1936 {300 (734)}	54,18°	2,76°	3,28	1,79
	1325 {280 (889)}	72,73°	1,63°	3,97	2,59
$\text{LiIO}_3$ Typ I	1936 {300 (734)}	27,06°	4,00°	2,27	0,80
	1325 {280 (889)}	29,44°	4,21°	2,44	0,93
BBO Typ I	1936 {300 (734)}	21,50°	3,05°	2,16	1,03
	1325 {280 (889)}	22,52°	3,16°	2,14	1,01

**Tabelle 5-2: Kristallparameter für die OPO-Anwendung. OPO-Pumpwellenlänge ist dabei 532 nm. Figure of Merit (FOM) und  $d_{\text{eff}}$  sind Kennzeichen für die Güte der Konversionseffizienz. Der Zusatz xz bezieht sich auf die xz-Ebene des Kristalls und bedeutet, dass  $\phi = 0$  ist.**

Für die Summenfrequenzmischung würden vom Transmissionsbereich und einer möglichen Phasenanpassung außer BBO noch CBO, CLBO und LBO in Frage kommen, allerdings mit einem gegenüber BBO deutlich geringeren effektiven nichtlinearen Koeffizienten (siehe Tabelle 5-3).

Auf Grund der Konversionseffizienz, der Belastbarkeit und nicht zuletzt der langjährigen Erfahrungen mit nlo Kristallen innerhalb der Lidar-Gruppe am DLR, wurde für die SFM nur BBO und für den OPO nur KTP und BBO in Betracht gezogen. BBO wurde dabei für den OPO nur wegen seiner Temperaturstabilität und der sehr hohen Zerstörschwelle und nicht wegen seiner Konversionseffizienz in die engere Auswahl genommen. Deswegen werden im Folgenden die Eigenschaften von BBO und KTP kurz genauer beschrieben.

Kristall	Wellenlänge [nm]	Winkel der Phasenanpassung	walk-off Winkel	$d_{eff}$ [pm/V]	$FOM = \frac{d_{eff}^2}{n_1 n_2 n_3}$ [pm <sup>2</sup> /V <sup>2</sup> ]
BBO Typ 1	300	29,2°	4,2°	2,01	0,85
	280	35,5°	4,7°	1,86	0,73
CBO Typ 1	300	12,2°	0,6°	0,44	0,05
	280	37,06°	1,4°	1,05	0,28
CLBO Typ 1	300	36,3°	2,2°	0,52	0,08
	280	44,1°	2,7°	0,62	0,11
LBO Typ 1	300	32,3°	1,0°	0,70	0,12
	280	47,7°	1,2°	0,55	0,07

**Tabelle 5-3: Zusammenstellung der in Betracht kommenden SFM-Kristalle [SNLO, Urschel 1995].** Feste Wellenlänge ist dabei 355 nm, welche mit 734 nm und 889 nm gemischt wird.

## 5.4 OPO-Kristall KTP

KTiOPO<sub>4</sub> Kaliumtitanylphosphat, kurz KTP, ist ein optisch positiver ( $n_o < n_e$ ), zweiachsiger Kristall der Kristallklasse mm2 (Punktgruppe) mit einem Transparenzbereich von 350 bis 4500 nm [Zumsteg et al. 1976, Aleksandrovsky et al. 1985].

KTP ist eines der verbreitetsten Kristallmedien zur Frequenzkonversion, was unter anderem an seinem sehr hohen nichtlinearen Koeffizienten, dem im Vergleich zu anderen nlo Kristallen wie z.B. LiIO<sub>3</sub> geringen walk-off Winkel, der hohen Temperaturbandbreite und der hohen Zerstörschwelle von mehr als 400 MW/cm<sup>2</sup> (@ 10 ns und 1064 nm) [Zumsteg 1978] bzw. 1GW/cm<sup>2</sup> (@1064 nm und 10 ns) [Lavrovskaya et al. 1986] liegt. Bei 526 nm besitzt KTP immer noch eine Zerstörschwelle von 30 GW/cm<sup>2</sup> [Dmitriev 1991 (Pulsdauer 30 ps)]. Auch sind die Herstellungsmethoden soweit ausgereift, dass zusammen mit der großen Absatzmenge ein relativ günstiger Preis im Vergleich zu seinen Derivaten wie z.B. KTA besteht.

Die Ausbreitung einer ebenen Welle in einem zweiachsigen Kristall ist komplizierter zu beschreiben, als in einem einachsigen Kristall. Beschränkt man sich allerdings auf die Hauptebenen (xy, yz, xz) des Kristalls, so vereinfacht sich die Beschreibung deutlich, da er in diesem Fall wie ein einachsiger Kristall behandelt werden kann. D.h. der ordentliche Strahl besitzt eine senkrechte und der außerordentliche Strahl eine parallele Polarisation bezüglich der entsprechenden Ebene.

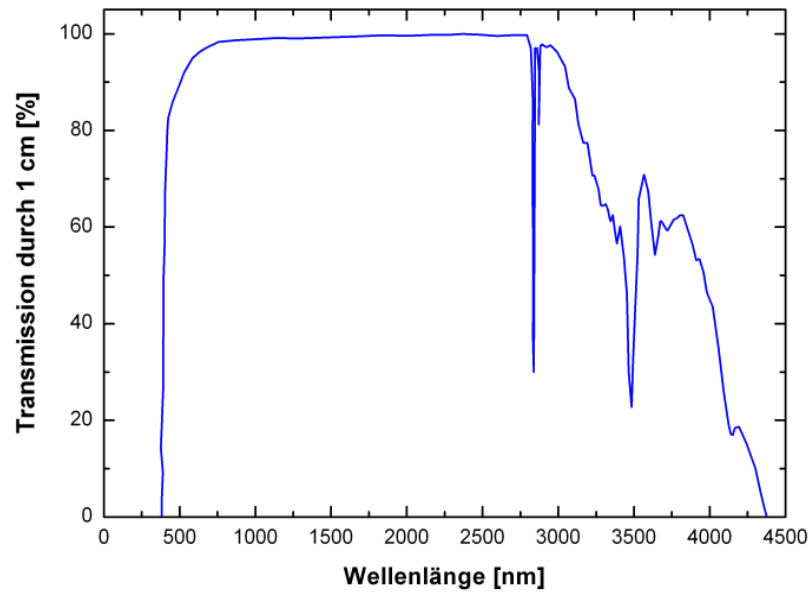


Abbildung 5-5: Transmissionskurve von KTP [SNLO]

Wird KTP für die Frequenzkonversion in einem optisch parametrischen Oszillator mit einer Pumpwellenlänge von 532 nm verwendet, so ist die effektivste Einsatzmethode eine Phasenanpassung über den Winkel vom Typ IIc. Dabei gilt

- Signal und Idler sind orthogonal (Typ II)
- alle Strahlen liegen in der xz-Ebene ( $\phi = 0$ ) (Zusatz c)
- Pump- und Idlerwelle sind ordentliche Strahlen, Signal außerordentlich (o  $\rightarrow$  eo)

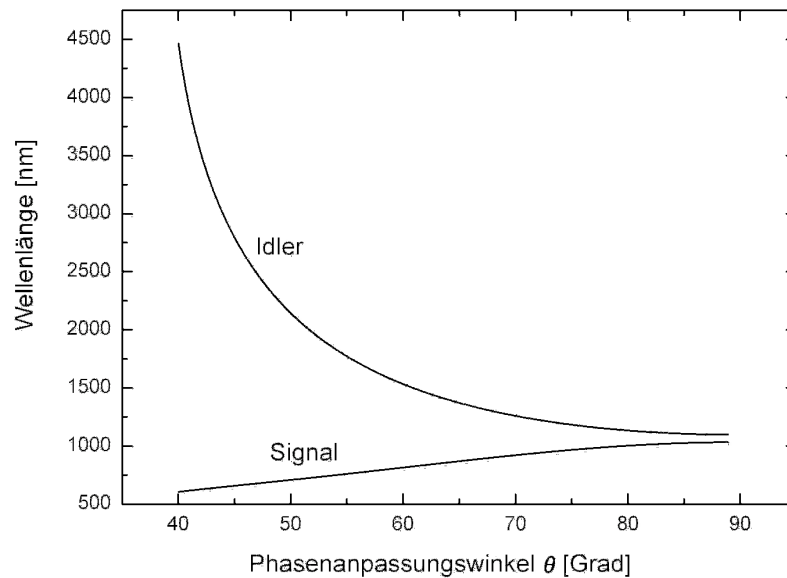
Eine Winkel Anpassung in der yz-Ebene (Typ IIa) ist zwar möglich, aber nur mit einem, um einen Faktor zwei kleineren  $d_{eff}$ . Bei einer Anpassung vom Typ I ist  $d_{eff}$  gleich Null.

Die Abhängigkeit von Signal- und Idlerwellenlänge gegenüber dem Winkel der einfallenden Pumpstrahlung bei einer Pumpwellenlänge von 532 nm ist in Abbildung 5-6 dargestellt. Für die hier in Betracht kommenden Wellenlängen sind die Kristallparameter für Winkel-, Bandbreiten- und Temperaturakzeptanz in Tabelle 5-4 zusammengefasst.

Die Winkelabhängigkeit des effektiven nichtlinearen Koeffizienten ist bei KTP Typ II (xz-Ebene)

$$d_{eff} = d_{32} \cdot \sin \theta \quad 5.4.1$$

mit  $d_{32} = 5,0 \text{ pm/V @ } 1064 \text{ nm}$  [Dmitriev 1991] ( $d_{32} = 2,65 \text{ pm/V @ } 1064 \text{ nm}$  [Dmitriev 1997]).



**Abbildung 5-6: Berechnete Signal- und Idlerwellenlängen in Abhängigkeit des Phasenanpassungswinkels für einen KTP Kristall Typ II in xz-Ebene für einen OPO mit einer Pumpwellenlänge von 532 nm.**

Der walk-off Winkel ist für die Idlerwelle gleich Null, da der Wellenvektor  $\vec{k}$  des ordentlichen Strahls parallel zum Poyntingvektor  $\vec{S}$  ist. Allerdings ist die möglich nutzbare Kristalllänge dennoch durch den walk-off Winkel begrenzt, da der Wellenvektor der Signalwelle nicht parallel zum Poyntingvektor ist und es sich um einen Dreiwellen-Mischprozess handelt (Gl. 5.1.13).

Winkelakzeptanz [Grad*cm]	300 nm	$2 \cdot 10^{-2}$
	280 nm	$3,2 \cdot 10^{-2}$
Bandbreitenakzeptanz [nm*cm]	300 nm	2,9
	280 nm	1,5
Temperaturakzeptanz [K*cm]	300 nm	19,45
	280 nm	21,34

**Tabelle 5-4: Errechnete Akzeptanzbandbreiten von KTP mit Wellenlängen aus Tabelle 5-1 # 3.**

Für den sich in dieser Arbeit ergebenden Teil des Signalspektrums von 734 bis 889 nm, ergibt sich ein walk-off Winkel von maximal  $3^\circ$  (Tabelle 5-2) und verursacht damit bezogen auf einen 12 mm langen Kristall, eine Abweichung von etwa 0,63 mm, was bei einem Strahldurchmesser von sechs Millimetern noch tolerierbar ist.

Weitere Daten wie z. B. die nichtlinearen Koeffizienten, Brechungsindizes und Dispersionseigenschaften für die unterschiedlich gezüchteten Kristalle, sind z.B. dem 'handbook of nonlinear optical crystals' [Dmitriev 1991] oder ähnlicher Literatur zu entnehmen.

## 5.5 SFM-Kristall BBO

$\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>  $\beta$ -Bariumborat oder kurz BBO ist ein optisch negativer ( $n_o > n_e$ ), einachsiger Kristall der Kristallklasse 3 m (Punktgruppe) mit einem Transparenzbereich, wie in Abbildung 5-7 dargestellt, von 189 bis 2600 nm [Kato 1986]. Die Kristalle lassen sich relativ gut beschichten und polieren und sind nicht besonders stark hygroskopisch. BBO besitzt eine vergleichsweise (siehe Tabelle 5-6) sehr hohe Zerstörschwelle von 23 GW/cm<sup>2</sup> (@ 1064 nm und 14 ns) [Nakatani et al. 1988]. Im UV bei 355 nm und einer Pulslänge von 10 ns beträgt die Zerstörschwelle immer noch mehr als 400 MW/cm<sup>2</sup> [Cheng et al. 1988].

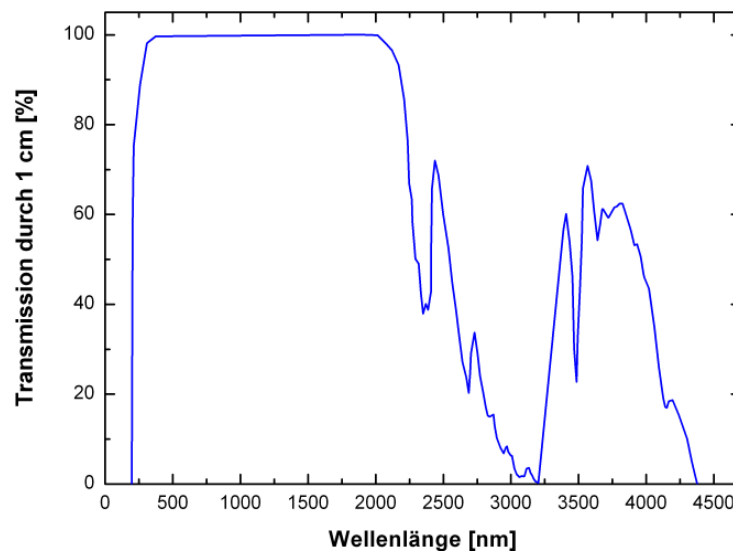


Abbildung 5-7: Transmissionskurve von BBO [SNLO]

Die Winkelabhängigkeit des nichtlinearen Koeffizienten  $d_{eff}$  beim Typ I ( $oo > e$ ) ist [Eimerl et al. 1987] durch

$$d_{eff} = d_{15} \cdot \sin \theta - d_{22} \cdot \cos \theta \cdot \sin 3\varphi \quad 5.5.1$$

gegeben, d.h. es ergibt sich ein Maximum bei  $\varphi = 90^\circ$ . Für Typ II Phasenanpassung ist  $d_{eff}$  kleiner und eignet sich somit weniger für den Einsatz in parametrischen Verstärkern. Die Winkel  $\theta$  und  $\varphi$  werden zwischen der kristallographischen x- bzw. z-Achse und der optischen Achse gemessen.

Für die Koeffizienten ergeben sich aus Messungen zur Erzeugung der zweiten Harmonischen [Chen et al. 1985]:

$$|d_{15}| = 0,07 \cdot |d_{22}| \quad . \quad 5.5.2$$

Die Messung und damit eine genaue Angabe der Koeffizienten, ist allerdings recht schwierig und in der Literatur werden auch unterschiedliche Angaben darüber gemacht. In der Regel werden die angegebenen Koeffizienten von BBO in Relation zu dem Koeffizienten  $d_{36}$  von KDP gesetzt, wobei sich dafür meist auf Levine et al. [1972] bezogen wird, welcher für  $d_{36}$  (KDP, 1064 nm) =  $(4,35 \pm 0,17) \cdot 10^{-11}$  pm/V angibt. Jedoch schwankt das Verhältnis je nach Quelle:

$$d_{22} = \pm(1,78 \pm 0,09) \cdot 10^{-12} \text{ m/V} \quad [\text{Chen et al. 1985}]$$

$$d_{22} = \pm(2,22 \pm 0,09) \cdot 10^{-12} \text{ m/V} \quad [\text{Fan et al. 1986}] \quad 5.5.3$$

$$d_{22} = \pm(2,48 \pm 0,1) \cdot 10^{-12} \text{ m/V} \quad [\text{Eckardt et al. 1990}]$$

Oft wird aber auch der Einfachheit halber nur der Wert  $d_{22} = 2,2$  pm/V angegeben.

Für die hier in Betracht kommenden Wellenlängen sind die Akzeptanzbandbreiten in Tabelle 5-5 zusammengefasst.

Winkelakzeptanz [Grad*cm]	300 nm	$6 \cdot 10^{-3}$
	280 nm	$5 \cdot 10^{-3}$
Bandbreitenakzeptanz [nm*cm]	300 nm	1,7
	280 nm	0,7
Temperaturakzeptanz [K*cm]	300 nm	14,62
	280 nm	9,8

**Tabelle 5-5: Errechnete BBO Akzeptanzbandbreiten mit Wellenlängen aus Tabelle 5-1 # 3**

BBO wird in dieser Arbeit aus den vorher genannten Gründen für die Summenfrequenzmischung eingesetzt und besitzt in dem verwendeten spektralen Bereich zur Erzeugung von UV (280 – 300 nm) einen walk-off Winkel von kleiner als  $4,7^\circ$  (Tabelle 5-3). Bei einem Strahldurchmesser von annähernd 6 mm und einer

Kristalllänge von etwa 4 mm ist dies aber zu vernachlässigen, da die Abweichung, auf die Länge des Kristalls bezogen, kleiner als 0,32 mm ist.

Eine sehr ausführliche Beschreibung der Kristalleigenschaften von BBO ist u. a. bei [Fix 1994] zu finden.

Die wichtigsten Kristallparameter von BBO und KTP sind noch einmal in Tabelle 5-6 einander gegenübergestellt.

	<b>KTP</b> (KTiOPO <sub>4</sub> ) Kaliumtitanylphosphat	<b>BBO</b> ( $\beta$ -BaB <sub>2</sub> O <sub>4</sub> ) $\beta$ -Bariumborat
Transparenzbereich [nm]	350 - 4500	189 - 2600
Zerstörschwelle	400 MW/cm <sup>2</sup> @ 1064 nm 10 ns	23 GW/cm <sup>2</sup> @ 1064 nm 14ns
Kristallklasse	mm 2	3 m
Anzahl der optischen Achsen	2 positiv ( $n_o < n_e$ )	1 negativ ( $n_o > n_e$ )

**Tabelle 5-6: Kristalleigenschaften von KTP und BBO.**

## 5.6 OPO-Design

Aufgrund der notwendigen Bedingungen, die sich aus den Simulationen ergeben haben

- 10 mJ Einzelpulsenergie im UV bei 10 Hz Repetitionsrate
- geringe spektrale Breite von nur wenigen Zehnteln Nanometer

und den Randbedingungen beim Flugzeugeinsatz ist es notwendig die Effizienz des Systems so hoch wie möglich zu gestalten. Deshalb wurde entschieden die Summenfrequenzmischung nicht außerhalb des OPO's, sondern innerhalb des Resonators (intracavity) zu realisieren. Es konnte schon früher gezeigt werden [Fix et al. 2000, Patent DE & US], dass die Konversionseffizienz einer intracavity SFM im Vergleich zu einer externen Mischung, um einen Faktor zwei gesteigert werden kann. Dabei ist der SFM-Kristall gleichzeitig deutlich kürzer als bei einer externen SFM, wodurch auch die Akzeptanzbreiten weniger kritisch sind, da diese umgekehrt proportional zur Länge des Kristalls sind (Gleichung 5.1.16).



Um die Konversionseffizienz noch weiter zu optimieren, wird der OPO mit Pumprückreflex betrieben, d.h. der Pumpstrahl wird reflektiert und läuft, wie in Abbildung 5-8 dargestellt, erneut durch den Kristall. Dadurch verdoppelt sich die effektiv wirksame Kristalllänge. Durch diesen Doppeldurchgang wird bei der hier realisierten Konfiguration zudem noch die Schwelle um einen Faktor von fast drei gesenkt und die Aufbauzeit des Pulses (Build-up time) verkürzt. Hinzu kommt, dass die Divergenz  $\theta$  und damit auch  $M^2$  ( $M^2 = \frac{\pi}{\lambda} \cdot \theta \cdot \omega$ , mit dem Radius der Strahltaile  $\omega$ ) reduziert wird.

Die Divergenz des OPO hat insofern einen Einfluss auf die Effizienz des Systems, als dass die anschließende SFM winkelabhängig ist (Winkelakzeptanz Gl. 5.1.16) und somit bei einem zu großen Öffnungswinkel des Strahls, nur ein Teil der Strahlung konvertiert wird. Im Gegensatz zu KTP beträgt bei BBO Typ I ( $e \rightarrow oo$ ) der Einfluss der Verbreiterung durch die Divergenz nur ein Bruchteil der Verstärkungsbandbreite, weshalb diese beim Einsatz von BBO als OPO-Kristall vernachlässigt werden kann [Anstett et al. 2001].

### 5.6.1 100 Hz Taktfrequenz

Zu Beginn der Arbeit bestand die einzigartige Möglichkeit, mit einem 100Hz diodengepumpten Nd:YAG Laser, der Firma Rofin-Sinar, als Pumpquelle Untersuchungen durchzuführen. Das Besondere an diesem Laser ist sein ausgezeichnetes Strahlprofil und seine hohe mittlere Leistung von etwa 20 W [Ehret et al. 2000]. Die Pulsenergie bei 532 nm beträgt dabei ca. 110 mJ und die energieabhängige Pulsdauer wurde auf 10 ns konstant gehalten. Untersucht wurden die Eigenschaften eines UV-OPO mit intracavity Summenfrequenzmischung, wie er in Abbildung 5-8 dargestellt ist, mit einem für die Signalstrahlung gewinkelten Resonator (Tabelle 5-1 #2). Mit dem verwendeten Spiegelsatz und der zweiten Harmonischen des Nd:YAG (532 nm) zur SFM wird dabei ein spektraler Bereich von 300 bis 320 nm abgedeckt.

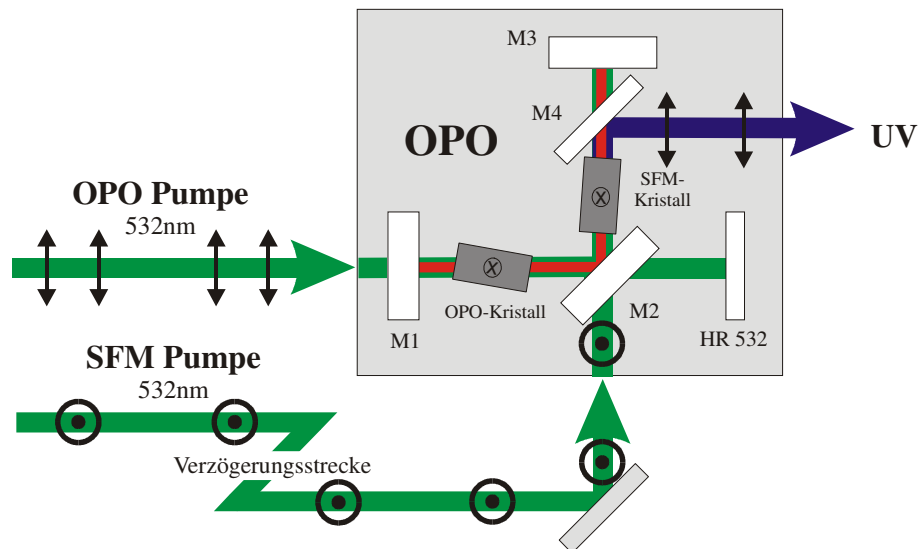
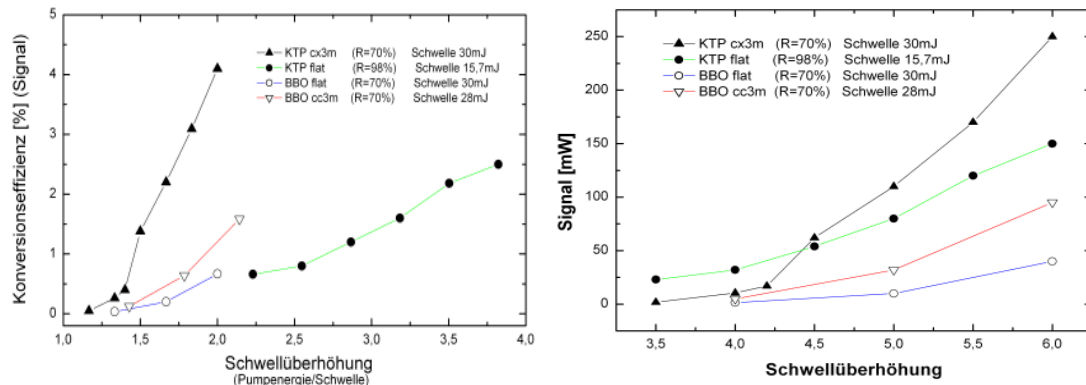


Abbildung 5-8: Gewinkelter OPO-Aufbau mit intracavity Summenfrequenzmischung

Die verwendeten OPO-Kristalle waren zum einen ein 12 mm langer KTP Kristall vom Typ II (xz-Ebene) mit einer Fläche von  $8 \times 7 \text{ mm}^2$  der unter einem Winkel von  $60^\circ$  geschnitten ist. Zum anderen wurde ein BBO Kristall Typ I mit den Maßen  $8 \times 7 \times 12 \text{ mm}^3$  und einem Schnittwinkel von  $21^\circ$  eingesetzt.

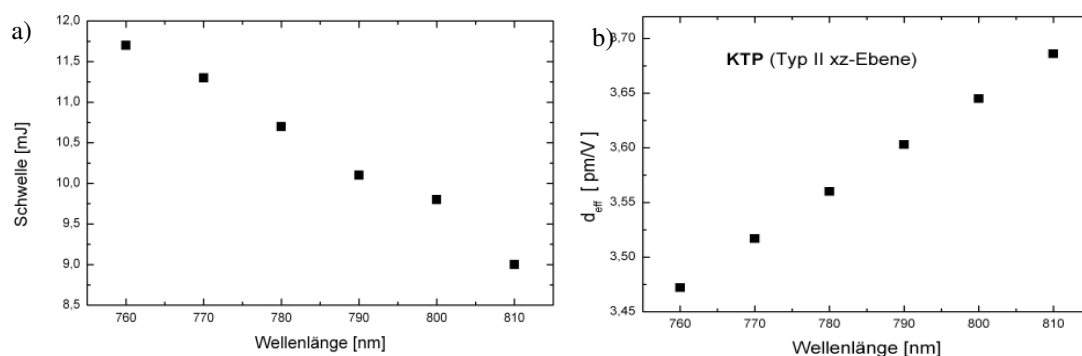
Wie aus der Theorie zu erwarten war, besitzt KTP als OPO-Kristall auch im Experiment eine höhere Konversionseffizienz als BBO (Abbildung 5-9) und es hat sich auch gezeigt, dass KTP in der Handhabung ebenso unkritisch ist wie BBO. Im weiteren Verlauf der Untersuchungen wurde deshalb auch nur noch KTP als OPO-Kristall verwendet. Zur intracavity Summenfrequenzmischung diente ein BBO Kristall Typ I mit den Maßen  $7 \times 7 \times 3 \text{ mm}^3$ . Wie man den Daten in Abbildung 5-9 entnehmen kann, ist die Effizienz mit gekrümmten Spiegeln höher als in einer Plan-Plan Konfiguration, was mit der thermischen Linse zu erklären ist, die durch die hohe mittlere Leistung des Lasers (max. 11 W, typisch 6 W) zustande kommt. Zu beachten ist dabei, dass der BBO OPO mit einem konvexen Resonatorspiegel nicht zum Schwingen gebracht werden konnte, bzw. der KTP OPO mit einem Konkaven Resonatorspiegel nicht lauffähig war. Aus Zeitgründen konnte dies leider nicht eingehender untersucht und die Spiegel entsprechend angepasst werden um die Effizienz des Systems zu verbessern.

Um die Pumpenergie zu regulieren und zu kontrollieren, wurde vor dem OPO ein justierbarer Abschwächer in Form einer drehbaren  $\lambda/2$ -Platte in Kombination mit einem Polarisationsfilter eingesetzt. Bei bekannter Ausgangsleistung des Nd:YAG Lasers kann die Pumpenergie online über die Messung des ausgekoppelten Strahls bestimmt werden.



**Abbildung 5-9:** Vergleich von BBO und KTP als OPO-Kristalle mit verschiedenen Resonatorspiegeln ohne SFM. Hierbei steht cx3m für konvex mit 3 m Radius und cc für konkav. R ist der Reflexionsgrad des Auskoppelspiegels für Signalstrahlung. Der OPO wurde mit der zweiten Harmonischen (532 nm) eines diodengepumpten 100 Hz Nd:YAG Lasers gepumpt.

Für die Erzeugung der UV-Strahlung wurde der über den Polarisationsfilter ausgekoppelte Anteil der Pumpenergie, zur Mischung mit dem entstandenen Signalpuls herangezogen. Somit lässt sich das Verhältnis von Pump- zu Mischenergie beliebig einstellen. Ein Verhältnis von 2:1 hat sich hierbei als optimal herausgestellt.



**Abbildung 5-10:** a) Wellenlängenabhängigkeit der Schwelle (Pumpe @ 532 nm) bei KTP OPO-Kristall Typ II (xz-Ebene) mit einem Schnittwinkel von 60° und 100Hz Repetitionsrate im Aufbau Abbildung 5-8 ohne SFM. b)  $d_{eff}$  von KTP in Abhängigkeit von der Wellenlänge [Urschel 1995].

Der Resonatorspiegel M3 in Abbildung 5-8, besitzt in diesem Testaufbau für die Signalwellenlänge eine Reflexion von 70 %. Die maximal erzielte Leistung im UV betrug damit 160 mW (1,6 mJ) bei einer Pumpenergie von 130 mJ.

Die Polarisation der vom Laser kommenden zweiten Harmonischen ist parallel und die Drehachse des KTP-Kristalls liegt in der Ebene der Polarisation. Für KTP Typ II gilt, dass Signal und Idler senkrecht zueinander polarisiert sind und Pumpe und Idler die gleiche Polarisation haben. D.h. die Signalstrahlung ist senkrecht zur Pumpe polarisiert und damit parallel zu dem durch den Polarisationsfilter ausgekoppelten Strahl. Für die SFM in einem BBO Typ I Kristall, müssen beide Strahlen parallel

zueinander polarisiert sein und die Drehachse des Kristalls in dieser Ebene liegen, also senkrecht zur Drehachse des KTP-Kristalls.

Der nichtlineare Koeffizient  $d_{eff}$  des Kristalls ist frequenzabhängig, damit ist auch die Schwelle und die Ausgangsleistung des OPO's frequenzabhängig, wie in Abbildung 5-10 zu sehen ist. Eine Zunahme der Nichtlinearität ist somit an eine Abnahme der Schwelle gekoppelt und umgekehrt.

Die Untersuchungen mit dem Rofin-Laser zeigten, dass BBO Typ I als OPO-Kristall deutliche Nachteile gegenüber KTP (geringere Effizienz) besitzt und dass die Repetitionsrate und damit die mittlere Leistung nicht ohne Probleme beliebig noch oben skalierbar ist. Allerdings stand der Rofin-Laser für weitere Untersuchungen leider nicht mehr zur Verfügung, da er wieder für Kampagnen eingesetzt wurde. Dennoch ist es wünschenswert, weiter Untersuchungen mit diesem Laser als Pumplaser für den OPO durchzuführen, da eine erhöhte Pumpfrequenz das räumliche Auflösungsvermögen des DIAL deutlich steigert.

### 5.6.2 10 Hz Taktfrequenz

Im Anschluss an die Untersuchungen mit dem 100 Hz Rofin-Laser wurden die Experimente mit dem für das Ozon-DIAL vorgesehenen Pumplaser, einem geseedeten 10 Hz Nd:YAG Laser vom Typ Continuum NY 61, fortgeführt. Die Pulsdauer dieses blitzlampengepumpten Lasers beträgt etwa 7 ns (siehe Abbildung 5-11) bei einem Strahldurchmesser von 6 mm und einer mittleren Leistung von etwa 4 W bei 1064 nm.

Dabei wurden verschiedene Möglichkeiten eines OPO Aufbaus experimentell untersucht, wobei bei diesen Voruntersuchungen mit den am Institut vorhandenen Spiegeln und Kristallen, gearbeitet wurde. Mit diesen Komponenten konnte im UV ein spektraler Bereich von 275 bis 288 nm abgedeckt werden. Diese Voruntersuchungen waren aber unter anderem auch wegen der Auswahl der korrekten Spiegel für den späteren UV-OPO notwendig.

Als erstes wurde untersucht, ob eine unterschiedliche Geometrie für den Idler-Resonator (linearen oder gewinkelten) einen Einfluss auf die Effizienz hat. Dazu wurden beide Varianten, wie in Abbildung 5-12 dargestellt und idlerresonant analog zu Abbildung 5-8, auf einem optischen Tisch aufgebaut, wobei in beiden Fällen die entstandene Idlerwelle mit der dritten Harmonischen des Nd:YAG gemischt wurde.

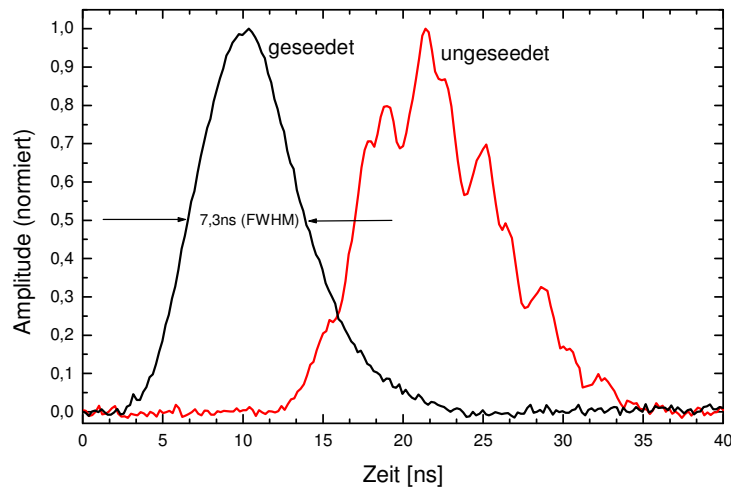


Abbildung 5-11: Geseedeter und ungeseedeter Laserpuls bei 532 nm des Continuum NY 61

Für den gegenüber dem Pumpimpuls zeitlich verschobenen Idlerpuls wurde in beiden Fällen experimentell etwa 2 Nanosekunden ermittelt. Um dies zu kompensieren, d.h. um die Idlerwelle intracavity mit der dritten Harmonischen des Nd:YAG ideal zu überlagern, wurde eine entsprechende Verzögerungsstrecke von etwa 60 cm eingebaut.

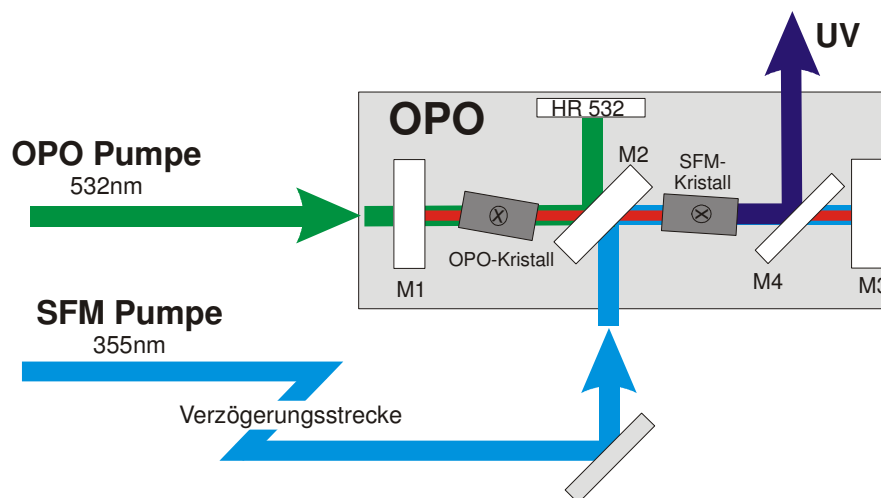


Abbildung 5-12: Skizze der OPO-Konfiguration mit linearem Resonator für Idler. Die Polarisation ist dabei identisch zu der in Abbildung 5-13 dargestellten Polarisation.

Aus den Experimenten geht hervor, dass die Unterschiede zwischen den beiden Aufbauten marginal sind. D.h. die Schwelle war im Rahmen der Messgenauigkeit bei beiden Aufbauten in einer vergleichbaren Größenordnung von etwa  $(28 \pm 2)$  mJ, genauso war die Effizienz in Bezug von Pumpenergie zu erzielter Signalenergie annähernd gleich. Die geringen Unterschiede waren nicht reproduzierbar und sind wahrscheinlich auf eine unterschiedlich gute Justierung zurückzuführen. Auf Basis

dieser Untersuchungen zeigt sich kein Vorteil eines gewinkelter Resonators gegenüber einem linearen und umgekehrt.

Den Ausschlag für die Realisierung eines linearen OPO-Aufbau lieferten die spektralen Anforderungen an die Spiegel und die damit notwendigen Beschichtungen. Wie sich herausstellte, sind die Beschichtungen für einen spektralen Bereich von 1325 bis 1940 nm im IR und daraus resultierend 280 bis 300 nm im UV, für einige der Spiegel in einer gewinkelten Konfiguration nur sehr schwierig und zum Teil gar nicht machbar. Aus diesem Grund wurde für das Flugzeugsystem ein etwas modifizierter Aufbau mit linearer Cavity, so wie er in Abbildung 5-13 dargestellt ist, entwickelt.

Die Pumpwelle wird dabei parallel polarisiert in den OPO geführt, wobei die Drehachse des KTP-Kristalls in der Ebene der Polarisation liegt. Für KTP Typ II sind Pumpe und Idler parallel zueinander polarisiert. Die entstehende Idlerstrahlung wird mit der dritten Harmonischen des Nd:YAG gemischt, welche die gleiche Polarisation wie die Pumpwelle besitzt. Für die SFM wird ein BBO Typ I Kristall ( $oo>e$ ) verwendet, bei welchem beide Mischstrahlen parallel zueinander polarisiert sein müssen und die Drehachse des Kristalls in dieser Ebene liegt. Die dabei entstehende UV-Strahlung ist senkrecht zur einfallenden Pumpstrahlung polarisiert.

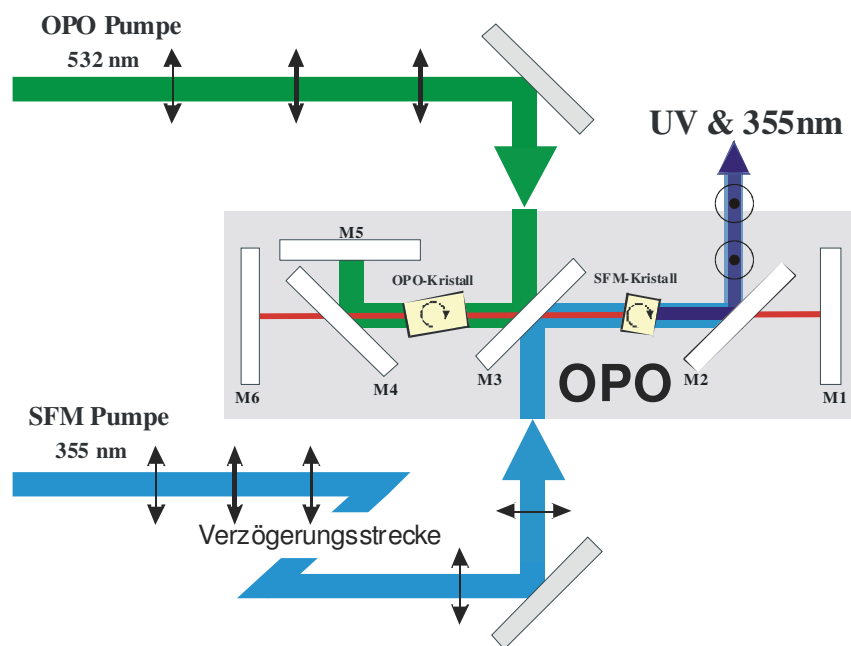


Abbildung 5-13: Skizze des für das Ozon-DIAL verwendeten UV-OPO's

Im Detail wurde zur Einkoppelung der Pumpstrahlung ein 45° Spiegel (M3) verwendet, bei dem die Vorderseite HR (high reflection) 532 nm, die Rückseite HR 355 nm und beide Seiten HT (high transmittance) 1490 nm bis 1790 nm beschichtet sind. Für den Spiegel M4 wurde aufgrund der nötigen Transmission, der gleich Spiegel verwendet. Die eigentlichen Resonatorspiegel M1 und M6 sind BK 7 Substrate, die breitbandig mit ZnS-System in einem Bereich von 1350 nm bis 1950 nm HR beschichtete sind. Als Auskoppelspiegel M2 dient ein für 45° S-polarisiert beschichtetes BK 7 Substrat mit HR 270 bis 300 nm und HR 355 nm Beschichtung.

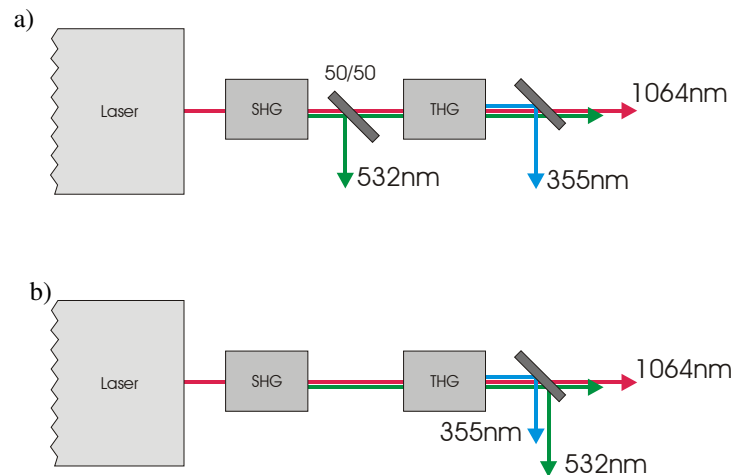
Bei einem zuvor verwendeten, nicht gekeilten Substrat mit der gleichen Beschichtung, wurde mehrfach aufgrund von Interferenzen die Oberfläche zerstört. Die Beschichtungen der Resonatorspiegel reagieren sehr empfindlich auf 532 nm und 355 nm, weshalb eine seitliche Einkopplung der Pump- und Mischstrahlung, sowie eine fast vollständige Auskopplung dieser beiden Wellenlängen vor den Spiegeln, notwendig ist.

Die Resonatorspiegel lassen im IR einen sehr breiten Durchstimmbereich von fast 600 nm Breite zu, was für die Signalwelle im NIR, bei einer Pumpstrahlung mit 532 nm, einem Bereich von 732 bis 878 nm entspricht. Die innerhalb des OPO verwendeten Spiegel sind so beschichtet, dass sie die entstehende Signalstrahlung nicht reflektieren, so dass diese an verschiedenen Stellen emittiert und somit auch detektiert werden kann. Diese Tatsache ist für eine ständige Frequenzüberwachung der emittierten UV-Messwellenlängen von großem Vorteil.

Um den gesamten möglichen Durchstimmbereich des Resonators zu nutzen, müsste der KTP-Kristall von  $53^\circ$  bis  $67^\circ$  (Tabelle 5-2) gedreht werden. Allerdings sind die angestrebten Idlerwellenlängen für die Ozonmessung 1498 nm und 1781 nm, was einem OPO-Kristallwinkel von  $54,8^\circ$  und  $60,9^\circ$  entspricht. Der verwendete KTP-Kristall ist ein für 532 nm und 1400-1850 nm Antireflex beschichteter KTP Kristall vom Typ II (xz-Ebene), der unter einem Winkel von  $57^\circ$  geschnitten ist. Die Länge beträgt 12 mm mit einer Fläche von  $8 \times 7 \text{ mm}^2$ . Der Kristall für die Summenfrequenzmischung ist ein BBO-Kristall vom Typ I mit den Maßen  $7 \times 7 \times 4 \text{ mm}^3$ . Die notwendigen Kristallwinkel sind  $30,4^\circ$  und  $33,2^\circ$ , wobei der verwendete Kristall unter einem Winkel von  $40^\circ$  geschnitten ist und mit einer Schutzschicht überzogen ist.

Ohne Doppeldurchgang liegt die wellenlängenabhängige Schwelle des OPO bei 55 mJ für 287 nm (Signal 825 nm, Idler 1498 nm) und 75 mJ für 296 nm (Signal 758 nm, Idler 1781 nm). Mit Doppeldurchgang liegt die Schwelle für beide Wellenlängen deutlich niedriger, bei etwa 25 mJ.

Um den Einfluss der Strahlqualität und Strahlenergie von OPO- und SFM-Pumpe zu untersuchen, wurde der OPO mit zwei unterschiedlichen Konfigurationen des Lasers mit seinen integrierten SHG (second harmonic generation) und THG (third harmonic generation) Einheiten getestet. Der Unterschied zwischen den beiden Konfigurationen besteht in erster Linie in den verschiedenen hohen Energien, die für das Pumpen des OPO und die anschließende SFM zur Verfügung stehen. In einem Fall werden etwa 50 % der SHG-Strahlung zwischen SHG und THG-Kristall ausgekoppelt (Abbildung 5-14 a), d.h. für die THG-Konversion steht deutlich weniger Energie zur Verfügung, aber dafür ist die Strahlqualität der Ausgekoppelten SHG-Strahlung besser als nach einem Durchgang durch den THG-Kristall. Im anderen Fall wird die gesamte SHG-Strahlung für den OPO erst nach dem THG-Kristall ausgekoppelt (Abbildung 5-14 b), was den Vorteil einer deutlich höheren Pump- und Mischenergie hat, bei gleichzeitig etwas schlechterer Strahlqualität der OPO-Pumpe.



**Abbildung 5-14: Auskopplung der Pumpstrahlung vor (a) und nach (b) der THG-Einheit.**

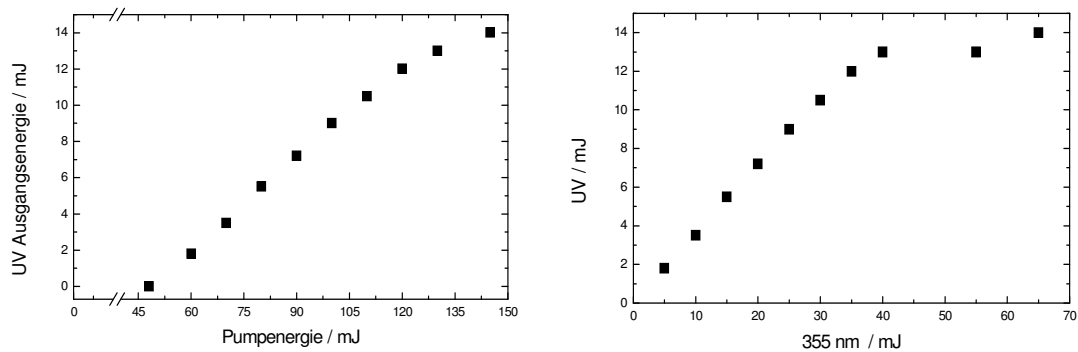
Wie sich herausstellte, ist die Verschlechterung der Strahlqualität der Pumpquelle zu vernachlässigen, nicht aber die höhere Leistung. Hierbei ist allerdings nicht die SHG-Strahlung für den OPO sondern die THG-Strahlung zur Summenfrequenzmischung der begrenzende Faktor. In Abbildung 5-15 ist auf der linken Seite die Ausgangsenergie in Abhängigkeit der Pumpenergie aufgetragen und es ist erkennbar, dass die Ausgangsenergie mit steigender Pumpenergie leicht in Sättigung geht. Auf der rechten Seite ist die Ausgangsenergie gegenüber der Energie für die Summenfrequenzmischung mit 355 nm aufgetragen, wobei hier die Ausgangsenergie noch nicht in Sättigung geht. D.h. es ist energetisch gesehen mehr Idlerstrahlung im Resonator vorhanden als nötig, aber nicht genügend SFM-Energie um eine vollständige Mischung zu erzielen.

Auf Grund dieser Untersuchung wäre die Variante der Strahlauskopplung nach der THG-Einheit (Abbildung 5-14 b) der Vorzug zu geben. Wegen thermischen Schwankungen war es allerdings nicht zu verhindern, dass der THG-Kristall ein wenig driftet. Diese Drift hat zur Folge, dass keine oder nur mehr wenig SHG-Strahlung konvertiert und diese somit auch nicht mehr abgebaut wird. Das führt wiederum dazu, dass der OPO Kristall zu stark belastet und zerstört werden kann, was während der Experimente auch geschehen ist.

Aus den Simulationen für das DIAL-System geht hervor, dass eine Energie von ca. 10 mJ für eine Ozonmessung ausreichend sein sollte. Deshalb wurde hier zu Gunsten einer besseren Kontrolle, der Variante a) in Abbildung 5-14, mit der Auskopplung der Pumpstrahlung zwischen SHG und THG, der Vorzug geben.

Die typische Pulsenergie im UV beträgt damit 11 mJ, wobei die maximal erzielte Pulsenergie 14 mJ beträgt. Damit liegt die optisch-optische Effizienz bei mehr als 3,5 % bezogen auf 1064 nm.

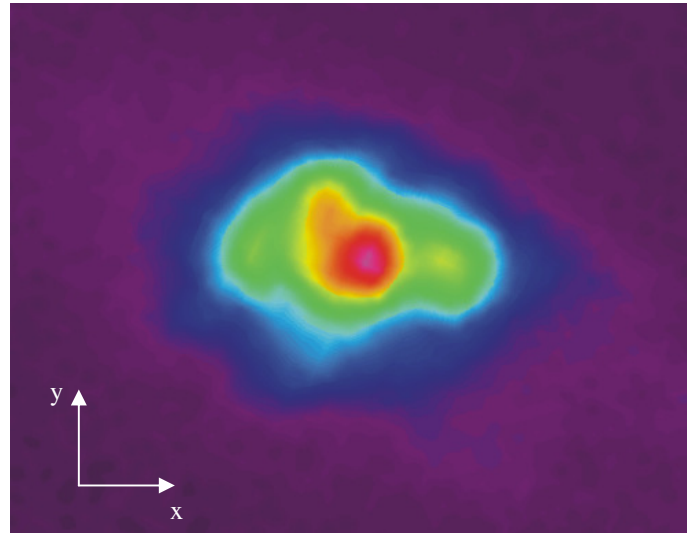




**Abbildung 5-15:** Die gemessene UV-Ausgangsleistung des OPO bei 287 nm gegenüber der Pumpenergie (532 nm) bei (links) gleich bleibender SFM-Energie (65 mJ, 355 nm) und bei konstant gehaltener Pumpenergie (145 mJ) und variiertener SFM-Energie (rechts).

Um das Strahlprofil des UV-OPO's zu analysieren, wurde dieses mit einer CCD-Kamera vermessen. Es zeigt aufgrund des walk-off Winkels im KTP-Kristall, eine leicht elliptische Form, wie in Abbildung 5-16 zu sehen ist. Die Divergenz (Vollwinkel) beträgt 0,77 mrad in x-Richtung und 0,59 mrad in y-Richtung.

Die Bandbreite des OPO im UV lässt sich nach oben hin mit Hilfe der Energieerhaltung ( $\Delta\omega_s = \Delta\omega_i$ ) abschätzen, wenn die Bandbreite und die Divergenz des Pumplasers vernachlässigt wird, was bei einer spektralen Breite von 135 MHz bei 1064 nm und 0,5 mrad Divergenz durchaus legitim ist. Aus Gleichung 5.1.6 wird ersichtlich, dass die spektrale Breite des einen Strahls gleich der des anderen Strahls sein muss. Greift man auf das Photonenbild in Abbildung 5-1 zurück und betrachtet die beiden entstandenen Photonen, so wird dies noch einmal anschaulich verdeutlicht. Die spektrale Breite (FWHM) der Signalstrahlung wurde mit einem Gitterspektrometer und CCD-Array gemessen und beträgt etwa 0,36 nm Online (Offline 0,26 nm), daraus ergibt sich für Idler eine spektrale Breite kleiner 1,42 nm und somit für die sich ergebenden UV-Wellenlängen eine spektrale Breite kleiner als 0,044 nm (<160 GHz). Die Bandbreite ist für DIAL-Messungen insofern wichtig, da sie bei der Bestimmung des differentiellen Absorptionsquerschnittes notwendig ist. Die Divergenz ist ein wichtiger Bestandteil bei der Berechnung der Überlappungsfunktion und bei der Bestimmung der Entfernung, ab welcher das System augensicher ist.



**Abbildung 5-16: Gemessenes Strahlprofil des UV-OPO**

Zusammengefasst kann festgestellt werden, dass mit den hier erzielten Ergebnissen für die Frequenzkonversion die Anforderungen, die sich aus den Simulationen und der Flugzeuganwendung ergeben haben, bestens erfüllt sind und der OPO eine ideale Laserlichtquelle für ein flugzeuggetragenes DIAL darstellt.

Die mechanische Realisierung bzw. der Aufbau des OPO sowie die Anbindung des OPO an den Laser werden im Folgenden näher beschrieben.

Der OPO wurde auf einer abgestrebten, 10 mm starken Aluminiumplatte montiert, welche plan mit der Montagefläche für die optischen Komponenten des Lasers befestigt wurde. D.h. alle optischen Komponenten im Laser und im OPO sind auf gleicher Höhe und starr miteinander verbunden (siehe Abbildung 5-17), wodurch die Justierung der Einkopplung stark vereinfacht und eine mögliche Fehlerquelle im späteren Betrieb ausgeschlossen wird. Die Abmessungen des gesamten OPO-Aufbaus (ohne Einkopplung), inklusive der Scanner (Kap. 5.7) betragen  $200 \times 170 \times 100 \text{ mm}^3$  (LxBxH).

Das Gehäuse des OPO wurde aus eloxiertem, 10 mm starkem Aluminium gefertigt, so dass Vibrationen während des Fluges keinen Einfluss auf die Funktionalität haben sollten. Die Resonatorspiegel sowie der Spiegel für den OPO-Doppeldurchgang sind von oben justierbar, womit eine unkomplizierte Optimierung des OPO während des Betriebes im Flugzeug durchgeführt werden kann. Die Spiegelhalter selber sind mit Passstiften versehen, so dass ein Spiegeltausch relativ unkritisch ist. Um die nlo Kristalle optimal an den Strahlengang anpassen zu können, ist sowohl die Position der Scannermotoren in der Höhe als auch die Länge der Kristallhalter variabel und arretierbar gehalten.

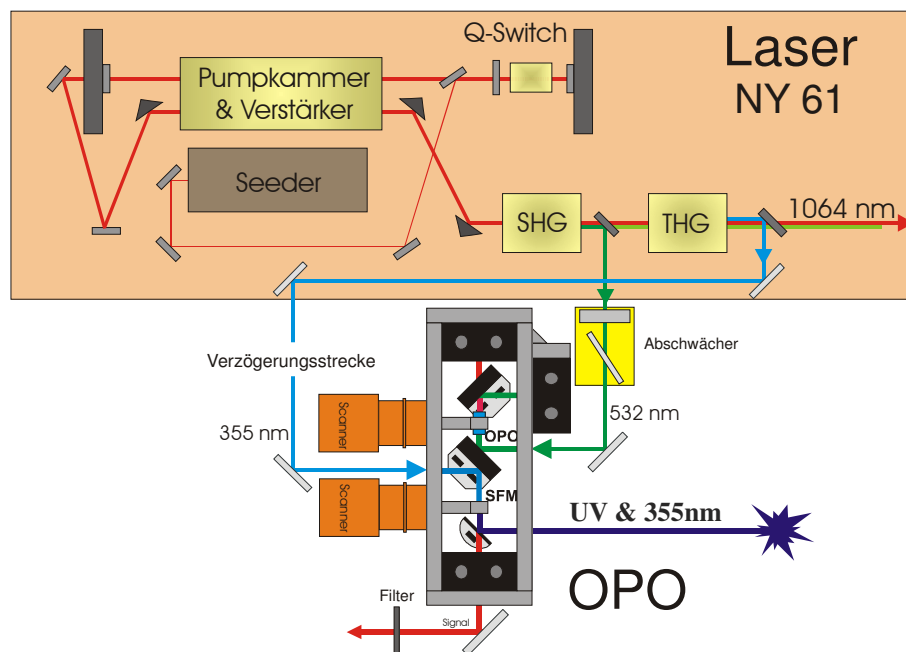
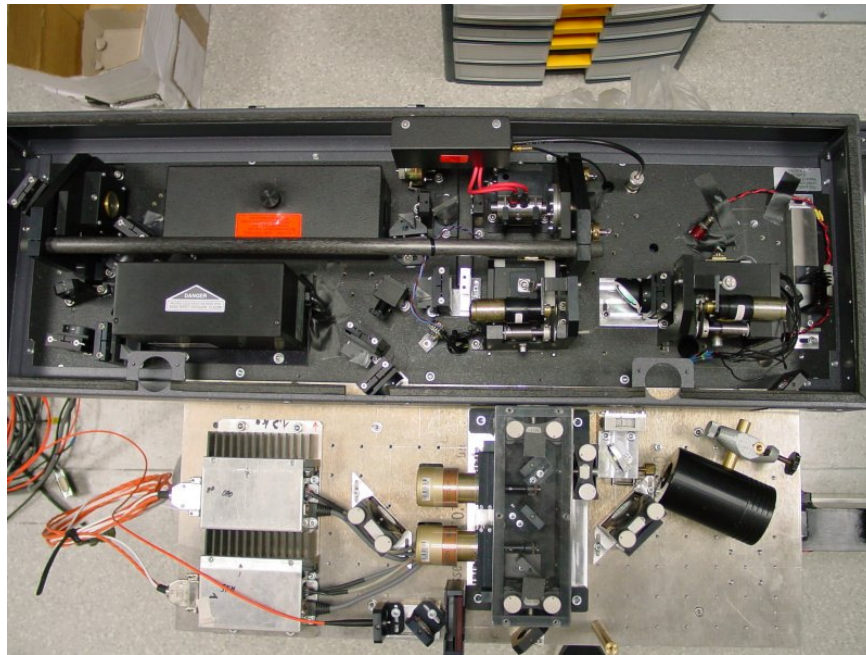


Abbildung 5-17: UV-OPO und Nd:YAG Pumplaser.

## 5.7 Wellenlängensteuerung

Die emittierten Wellenlängen des OPO-Systems hängen vom Kristallwinkel des OPO-Kristalls bezüglich des einfallenden Pumpstrahls ab. D.h. die nötigen Wellenlängen werden durch eine entsprechende Drehung des Kristalls erzeugt.

Für ein DIAL-System werden zwei unterschiedliche Wellenlängen benötigt. Wegen der nötigen Einzelpulsenergie werden die Wellenlängen hier alternierend ausgesendet. Daher müssen die beiden Kristalle für OPO und SFM, synchron mit 10Hz verstellt werden. Um die Geschwindigkeit der Einstellungen und die Genauigkeit der Kristallwinkel von Puls zu Puls über einen hinreichend langen Zeitraum zu gewährleisten, wurde für beide Kristall ein beheizter Galvoscaner vom Typ M2ST der Firma *General Scanning Inc.* eingesetzt. Laut Herstellerangaben beträgt der maximal mögliche Stellwinkel der Scanner  $\pm 30^\circ$ , Jitter 6  $\mu\text{rad}$  und Wobbel 1,5  $\mu\text{rad}$ . Mit Jitter ist die Abweichung innerhalb der Scanebene gemeint und mit Wobbel die Abweichung senkrecht zur Scanebene. Bei voller Auslenkung beträgt die Wiederholpräzision 31  $\mu\text{rad}$  und die Einstellgeschwindigkeit ist typischerweise kleiner als 2 ms. Bei kleineren Winkeln, wie z.B. den für den OPO maximal benötigten Winkel von  $6,1^\circ$ , liegt die Einstellgeschwindigkeit unterhalb von 400  $\mu\text{s}$ . Damit ist es problemlos möglich, die gewünschte Wellenlänge von Puls zu Puls (100 ms) über die zugehörige Regelelektronik und einen PC einzustellen.

Ausgehend von den Werksangaben und einer möglichen Winkeldifferenz von etwa 10 % des Verstellwinkels von max.  $6,1^\circ$ , wird eine maximale Fehleinstellung des Winkels von 10  $\mu\text{rad}$  beim OPO-Kristall als Näherung angenommen. Daraus ergibt sich eine Abweichung der Idlerwellenlänge von weniger als  $5 \cdot 10^{-4}$  nm. Im Rahmen der Messgenauigkeiten und einer spektralen Breite der Idlerwelle von  $< 1,45$  nm ist dies zu vernachlässigen.

Wie aus der DIAL-Theorie ersichtlich, ist es für die Auswertung der Messungen und damit im Umkehrschluss natürlich auch für die korrekte Einstellung der Kristallwinkel, sehr wichtig, die Wellenlängen genau zu kennen. Zu diesem Zweck wird hinter einem der Resonatorspiegel (M1 Abbildung 5-13) die austretende Signalstrahlung umgelenkt, gefiltert, abgeschwächt und über eine Glasfaser in ein Gitterspektrometer mit CCD-Array (HR2000 / OceanOptics) eingekoppelt. So ist es möglich, online die UV-Wellenlänge jedes Pulses mit einer Genauigkeit von besser als  $8 \cdot 10^{-2}$  nm zu bestimmen (Kapitel 8.1.1). Die verwendete Datenerfassung arbeitet allerdings mit einem Linux Betriebssystem, wohingegen das Spektrometer z. Zt. nur unter MS Windows betrieben werden kann. Sobald die notwendigen Linuxtreiber erstellt worden sind, wird es auch möglich sein, zu jedem ausgehenden Puls die zugehörige Wellenlänge aufzuzeichnen und in die Auswertung mit einzubeziehen. Bisher wurden die Wellenlängen online auf einem zusätzlich mitgeführten Notebook aufgezeichnet und überwacht.

Wie in Kapitel 8 gezeigt wird, ist die Frequenzstabilität des Systems, auch über mehrere Stunden hinweg, bei weitem für die DIAL-Anwendung ausreichend.

## 6. Das TropOLEX System

Das Gesamtsystem des **Trop**ospheric **O**zone **L**idar **E**xperiment, kurz **TropOLEX**, besteht aus einem 10Hz Nd:YAG Pumplaser, einem OPO für die Frequenzkonversion und einem Teleskop mit Detektorbox. Dazu gehört noch ein 19“- Rack für Power Supply und Kühlung des Lasers sowie die Datenerfassung. Für die Flugzeugintegration ist ein Rahmen für die DLR Falcon 20E sowie ein Adapter für die DLR Cessna 208 Grand Caravan vorhanden. Alles in allem besitzt das System eine Gesamtmasse von etwa 270 kg. Im Vergleich zu den weltweit operierenden flugzeuggetragenen Ozon-DIAL-Systemen (siehe Kap. 1) für die Troposphäre, ist dies sehr gering.

Der Energiebedarf von typischerweise etwa 1100 Watt und das vergleichbar geringe Gewicht des TropOLEX qualifizieren es somit bestens für den Einsatz in einem einmotorigen Flugzeug wie der Cessna Grand Caravan 208B des DLR.

Für die Messung wird die im OPO erzeugte UV-Strahlung, coaxial zur optischen Achse des Teleskops, über mehrere justierbare Umlenkspiegel ausgekoppelt. Um die Justierung der Auskopplung im Betrieb zu prüfen und gegebenenfalls zu optimieren, ist einer der Auskoppelspiegel über Piezomotoren per PC um zwei Achsen verstellbar.

Die Frequenzkontrolle der emittierten Messwellenlängen wird online über die Signalstrahlung des OPO und einem Spektrometer (OceanOptics HR 2000) realisiert, womit die Wellenlänge für jeden einzelnen Laserpuls bestimmt werden kann.

Ein wichtiger Aspekt bei Flugzeugmessungen in relativ geringer Höhe ist die Augensicherheit. Insbesondere, wenn wie hier, die Laserstrahlung direkt auf den Erdboden gerichtet ist und somit auch in Richtung von potentiellen Beobachtern gesandt wird.

Die rechtlichen Vorschriften sehen für verschiedene Wellenlängen auch unterschiedliche maximal zulässige Bestrahlungsstärken vor. Für den Bereich von 200 bis 302,5 nm liegt die höchste zulässige Bestrahlungsstärke bei  $30 \text{ J/m}^2$  und für 355 nm bei 6 ns Pulsen bei  $49 \text{ J/m}^2$  (DIN VDE 0837). Aus den Werten in Tabelle 6-1 ergibt sich, dass das System im Betrieb bereits ab 40 m unterhalb des Flugzeuges diese Anforderungen erfüllt und somit als augensicher gilt.

Das Teleskop ist ein 68 kg schweres, 350 mm Cassegrain-Teleskop der Firma B. Halle Nachfolger aus dem Jahr 1979 mit 5 m Brennweite. Seit seiner Herstellung wurde dieses Teleskop bei den verschiedensten Lidar- und DIAL-Systemen der Arbeitsgruppe Lidar verwendet. Es besitzt eine sehr breitbandige HR-Beschichtung von 0,25 bis  $1,1 \mu\text{m}$  und ist somit für den NIR-Bereich sowie auch für den UV-Bereich einzusetzen. Das Teleskop fokussiert die zurückgestreuten Photonen durch die Detektorbox hindurch über verschiedene Filter auf die Photomultiplier (PMT)

vom Typ Hamamatsu R5600. Das analoge Signal wird direkt am PMT digitalisiert und mit 10 MHz und 14-bit Tiefe an die Datenerfassung weitergeleitet.

	280-300 nm	355 nm
max. zulässige Bestrahlungsstärke nach DIN VDE 0837 [ $\text{J}/\text{m}^2$ ]	30	49 ( $\tau = 6 \text{ ns}$ )
max. Pulsenergie [mJ]	14	25
Strahldurchmesser [mm]	5	6
min. Divergenz (Vollwinkel) [mrad]	0,6	0,5
Bestrahlungsstärke in 40 m Entfernung [ $\text{J}/\text{m}^2$ ]	21,2	47,1

**Tabelle 6-1: Werte zur Bestimmung der Augensicherheit nach DIN VDE 0837**

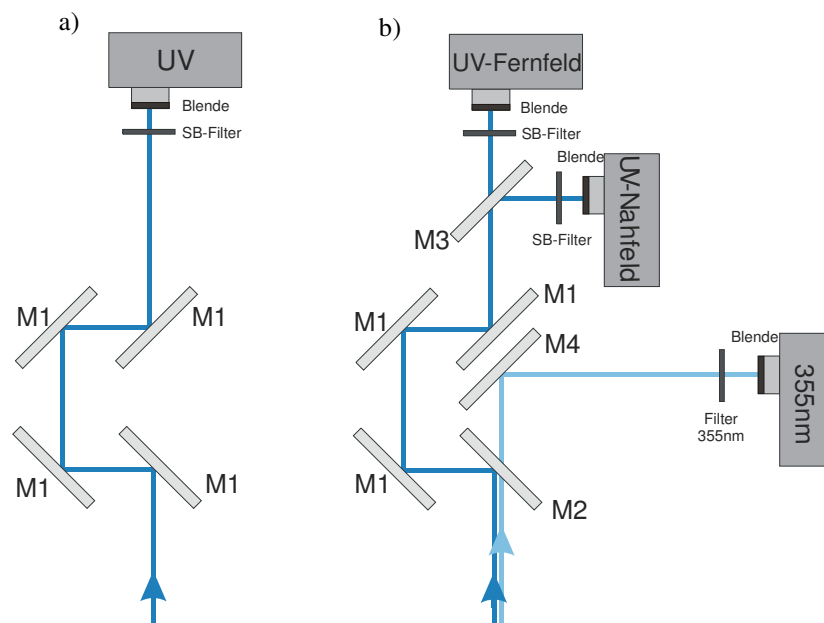
Der Prototyp der Detektorbox war, wie in Abbildung 6-1 a dargestellt, nur mit einem UV-Kanal für die Ozonbestimmung ausgestattet. Mit dieser Version wurden die Bodenmessungen und auch die ersten Flugzeugmessungen durchgeführt.

Im Frühjahr 2003 wurde ein zweiter UV-Kanal mit einem größeren Field of View für geringere Distanzen in die Detektorbox integriert (Abbildung 6-1 b). Die Erweiterung war zum einen wegen der sehr großen Signaldynamik notwendig und zum anderen wird durch das größere FOV früher ein vollständiger Überlapp erreicht. Während der Strecke vom Flugzeug zum Boden und wieder zurück nimmt das Lidar-Signal um etwa vier Größenordnungen ab. Die Spannung des PMT muss deshalb relativ hoch eingestellt werden, um aus größerer Entfernung noch ein gutes Signal zu empfangen. Das wiederum hat zur Folge, dass der PMT auf den ersten hundert Metern unterhalb des Flugzeuges übersteuert ist (Kapitel 3, Überlapp), was durch den zusätzlichen Kanal kompensiert wird. Durch diese Ergänzung konnte der Messbereich im Nahbereich um etwa 300 m erweitert werden. Bei einer Flughöhe von 3000 m, einer durchschnittlichen Höhe des Bodens von ca. 500 m und einem vollständigen Überlapp des Fernfeldkanals nach 600 m, entspricht der räumlich Gewinn durch den Nahfeldkanal etwa 15 %.

Realisiert wird der Ozon-Nahfeldkanal durch die Auskopplung eines Teils der Signalstrahlung in der Detektorbox mit einem einseitig für 200 bis 400 nm Antireflex beschichteten Quarzsubstrat. Dieser Strahlteiler ist zwischen den Filtern und dem PMT eingebaut. Der ausgekoppelte Anteil des UV-Signals beträgt etwa 4 % und ist mit einer dem Überlapp entsprechend größeren Blende versehen. Der Bereich den dieser Kanal abdeckt, beginnt etwa 300 m unterhalb des Flugzeuges und erstreckt sich dann bis zum Boden. Für die gegenseitige Kalibrierung von Nah- und Fernfeld-Kanal ist es notwendig, dass beide einen möglichst großen gemeinsamen Messbereich besitzen. Ab etwa 600 m Entfernung vom Flugzeug liefert der Fernfeldkanal sehr gute Daten, weshalb ab da eine Synchronisation durchgeführt werden kann.

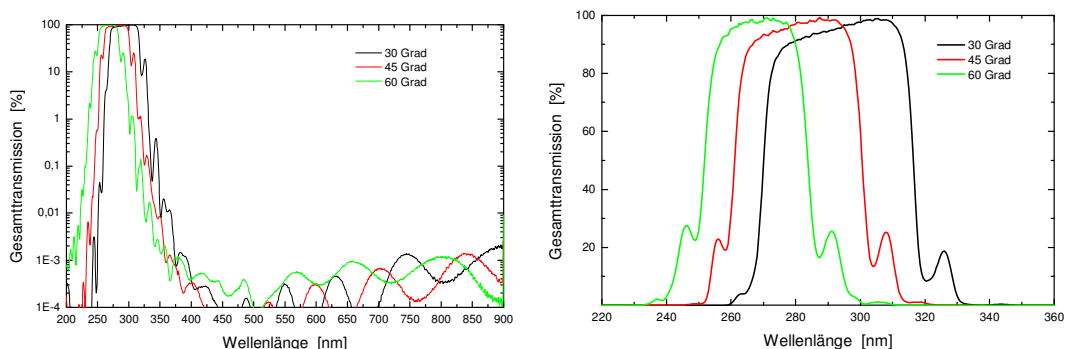
In Bodennähe sind die Daten des Nahfeldkanals sehr verrauscht, was zum einen auf das sehr viel schwächere Signal und zum anderen auf die höhere Betriebsfrequenz des PMT zurückzuführen ist. Die Taktrate für den Nahfeldkanal beträgt 30 MHz mit 12-bit, was einem vertikalen Auflösungsvermögen von 5 m entspricht.

Wie in Kap. 3 erläutert, ist für die Auswertung der DIAL-Messungen unter bestimmten Voraussetzungen die Aerosolverteilung in der Atmosphäre von Bedeutung, daher ist es wichtig, diese zu messen. Eine rechnerische Bestimmung ist über ein iteratives Verfahren mit den beiden vorhandenen Messwellenlängen zwar möglich, aber mit großem Aufwand verbunden. Die Wellenlänge der verdreifachten Harmonischen des Nd:YAG Lasers (355 nm) eignet sich sehr gut für die Aerosoldetektion und steht als zusätzliche Messwellenlänge auch zur Verfügung. Der Vorteil des 355 nm-Kanals für die Aerosolbestimmung gegenüber den zur Ozonmessung verwendeten Wellenlängen liegt in der verminderten Rayleighstreuung (Kapitel 2.2.1). Im Vergleich zum Offlinekanal (296,1 nm) verbessert sich das Signal um einen Faktor von 2,1 und für den Onlinekanal (286,8 nm) sogar um 2,4.



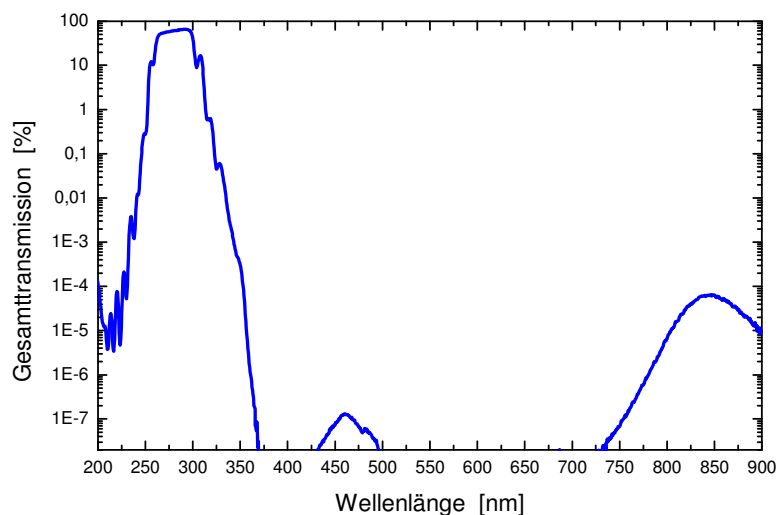
**Abbildung 6-1: a) Schema der Detektorbox b) die in 2003 erweiterte Detektorbox mit einem zusätzlichen Nahfeld- und 355 nm Aerosolkanal.**

Die Detektorbox wurde deshalb, wie in Abbildung 6-1 b dargestellt, beim Einbau des Nahfeldkanals noch um einen dritten Kanal für die Rückstreuung bei 355 nm erweitert



**Abbildung 6-2: Winkelabhängige Transmissionskurven der UV-Filter (linear und logarithmisch aufgetragen)**

Die primäre Selektion der Wellenlängen in der Detektorbox findet über einen Spiegel statt, der HT für 355 nm und HR für 270 nm bis 300 nm (M2 Abbildung 6-1) beschichtet ist. Das einfallende Signal bei 355 nm wird somit transmittiert und der Rest des Strahls um 90° umgelenkt. In dem umgelenkten UV-Kanal für die Ozonmessung sind mehrere winkelabhängige und somit durchstimmbare Reflexionsfilter (M1 Abbildung 6-1, Transmissionskurve siehe Abbildung 6-2) integriert, um das Signal von dem noch vorhandenen Streulicht und 355 nm-Anteil zu trennen. Da diese Filter im sichtbaren und IR-Bereich das Hintergrundlicht aber nicht ausreichend blocken (siehe Abbildung 6-2), ist noch zusätzlich ein Solar-Blinder (SB) Filter eingebaut, um das restliche Licht zu unterdrücken und den PMT zu schützen (siehe Abbildung 6-3).

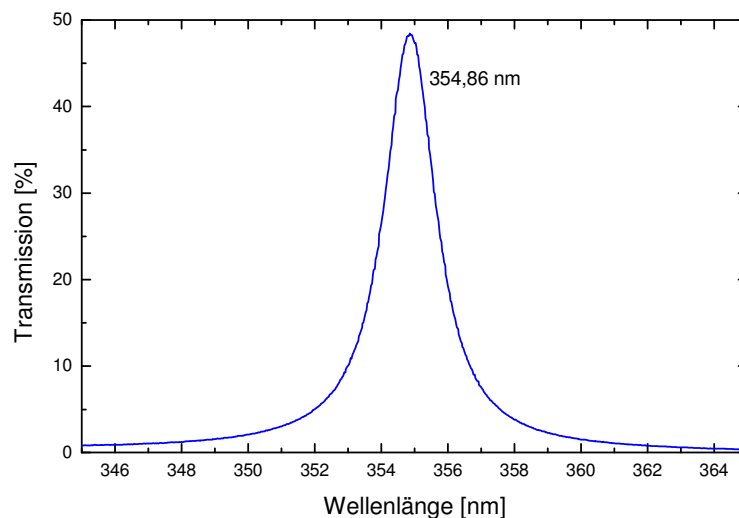


**Abbildung 6-3: Gesamttransmission der UV-Filter in Kombination mit dem Solar-Blind Filter**

Für die Unterdrückung des Streulichts im Kanal für 355 nm wird ein spezieller Interferenzfilter (Abbildung 6-4) verwendet. Für alle drei Kanäle wurde ein PMT vom Typ Hamamatsu R5600 verwendet. Der PMT des Nahfeldkanals wird mit einer



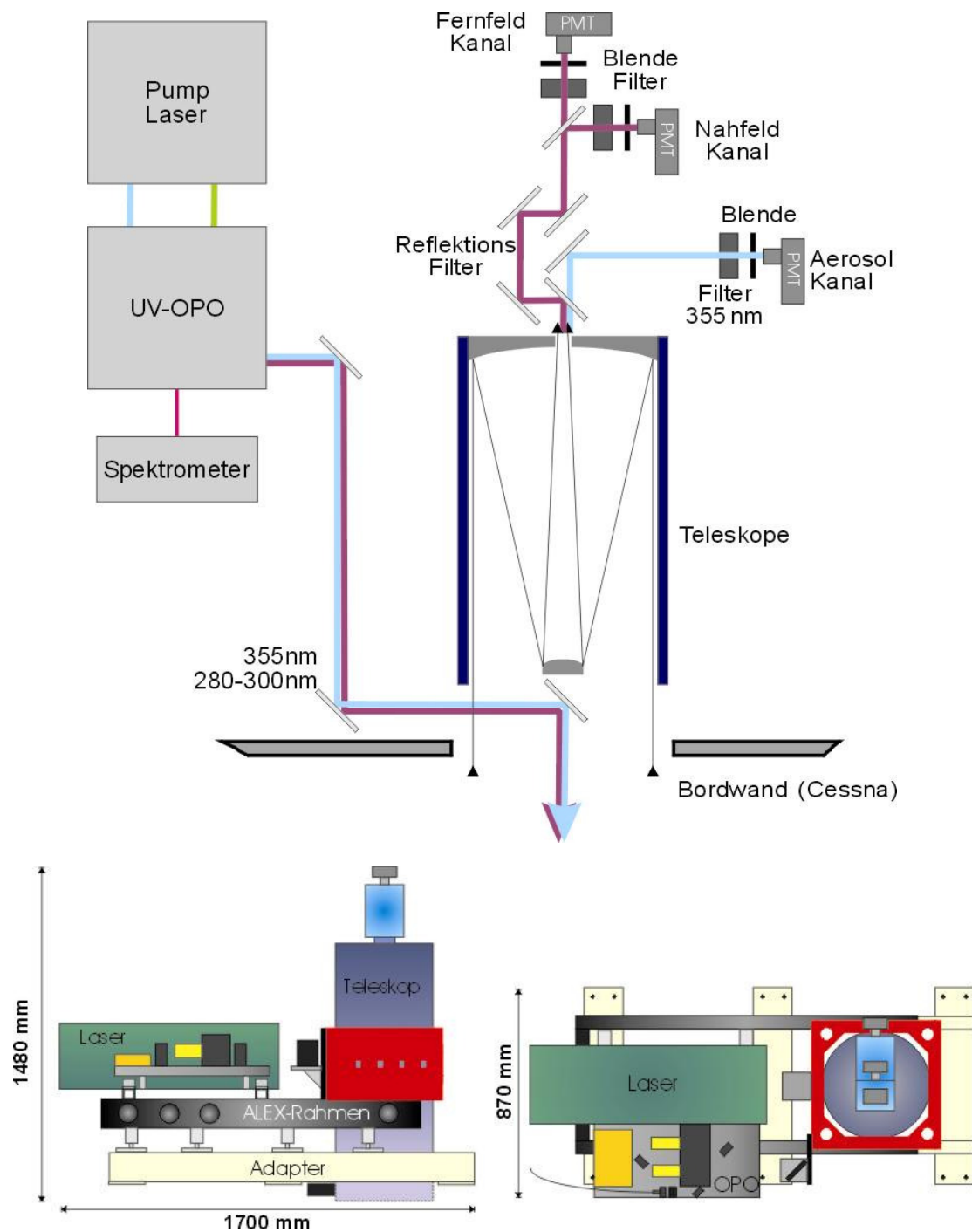
höheren Taktrate betrieben, wodurch das räumliche Auflösungsvermögen um einen Faktor drei erhöht wird, aber auch das Rauschen um einen Faktor von etwa 2-3 zunimmt. Die Quanteneffizienz der PMT's liegt bei etwa 20 – 25 %.



**Abbildung 6-4: Transmissionskurve des Interferenzfilters für 355 nm**

In der Cessna Grand Caravan gibt es zwei Öffnungen an der Unterseite, die mit einer Klappe versehen sind (Abbildung 7-4, oben), welche bei Start und Landung geschlossen wird, um die Strahlauskopplung und das Teleskop vor Verunreinigungen und eventuellem Steinschlag zu schützen. Das TropOLEX wird so in die Cessna eingebaut, dass das Teleskop über der hinteren der beiden Öffnungen sitzt. Somit ist noch genügend Raum in der Kabine für fünf Besatzungsmitglieder (zwei Piloten, ein Bordmechaniker und zwei Systemopereure), Sauerstoffanlage, Datenrack und einem Inertialmesssystem mit sehr präzisiertem GPS und integriertem Kreisel. Die genauen Angaben über Position und Fluglage sind hauptsächlich für Kameraflüge von großer Bedeutung, aber auch bei DIAL-Messungen notwendig, da insbesondere die Roll- und Nickbewegungen bei der Auswertung der Flüge später korrigiert werden müssen.

Bei der Planung des Ozon-DIAL's war der Grundgedanke zum einen, auf ein bereits für den Flugbetrieb zugelassenes System zurückzugreifen, um so den Aufwand für die Flugzeugzulassung zu reduzieren und zum anderen, ein System zu konstruieren, das sowohl auf der DLR Falcon als auch auf der DLR Cessna eingesetzt werden kann. Die Cessna fliegt relativ langsam und in niedriger Höhe. Sie eignet sich daher besonders für Grenzschichtmessungen und Überwachung der Luftqualität. Die Falcon dagegen fliegt sehr hoch und ist deshalb für die Untersuchung der freien Troposphäre und des Stratosphären-Troposphären-Austausches sehr gut geeignet.



**Abbildung 6-5: Schematische Darstellung der Detektorbox oben und Gesamtsystem TropOLEX unten.**

Aus diesem Grund wurde das seit langem erfolgreich eingesetzte ALEX-System (Aerosol Lidar Experiment) als Basis herangezogen. Das ALEX-System ist ein Dreiwellenlängen Lidar zur Aerosolmessung mit einem speziell für die DLR Falcon angepassten Rahmen. Der Laser wurde übernommen und um einen OPO zur Frequenzkonversion erweitert und zusätzlich ein Adapter für die DLR Cessna angebracht. Durch das Entfernen des Cessna-Adapters, ist es möglich, das System ohne weitere Umbauten in der DLR Falcon zu installieren. Allerdings haben beide Flugzeugtypen unterschiedliche Zulassungsanforderungen bezüglich der Lastvielfachen, weshalb das System für beide Flugzeugtypen gesondert zugelassen

werden müsste. Für eine bessere Übersicht über das gesamte TropOLEX-System, sind in Tabelle 6-2 und Tabelle 6-3 noch einmal die wichtigsten Komponenten zusammengefasst.

<b>Sende- und Diagnoseeinheit des TropOLEX-Systems</b>		
<b>Laser</b>  Continuum NY-61 (geseeded)	Typ	Blitzlampengepumpter Nd:YAG (10 Hz)
	Energie	530 mJ @ 1064 nm mit Amplifier 180 mJ @ 532 nm (ohne THG) 55 mJ @ 355 nm
	Pulsdauer	6-8 ns @ 1064 nm 5-7 ns @ 532 nm, 355 nm
	Strahldurchmesser	6 mm
	Divergenz	0,5 mrad
	Bandbreite	135 MHz @ 1064 nm
<b>OPO</b>	OPO-Kristall	KTP Typ II, xz-Ebene, 8x7x12 mm <sup>3</sup> , 57°
	SFM-Kristall	BBO Typ I, 7x7x4 mm <sup>3</sup> , 40°
	Durchstimmbereich	280 – 300 nm
	typische UV-Ausgangsenergie (Maximum)	11 mJ ( 14 mJ )
	Strahldurchmesser	5 mm
	Divergenz (Vollwinkel)	< 0,8 mrad
	Bandbreite	< 0,044 nm (160 GHz)
	Pulsdauer	6 ns
	Abmessungen (LxBxH)	200x170x100 mm <sup>3</sup>
<b>Scanner</b>  General Scanning Inc.	Typ	M 2 ST (beheizt)
	Max. Auslenkung	± 30°
	Wobbel (⊥ zur Scanebene)	± 1,5 µrad
	Jitter (    zur Scanebene)	± 6 µrad
	Wiederholbarkeit	12 µrad (0,001 nm)
	Geschwindigkeit	small step < 400 µs (full step < 2 ms)
<b>Spektrometer</b>  OceanOptics HR 2000	Einkopplung	Glasfaser
	Detektor	Sony ILX511 linear CCD (2048 Pixel)
	Spektraler Bereich	710 – 885 nm
	Grating	1200 Linien / mm
	Auflösungsvermögen	0,13 nm (FWHM)

**Tabelle 6-2: Sende- und Kontrolleinheit des TropOLEX-Systems**

<b>Empfangseinheit des TropOLEX-Systems</b>		
<b>Teleskop</b>  B. Halle Nachfolger (1979)	Typ	Cassegrain
	Durchmesser des Primärspiegels	350 mm
	Masse	68 kg
	Reflexionsbereich	0,25 – 1,1 $\mu\text{m}$
	Brennweite	5 m
	Max. Öffnungswinkel (FOV)	$\pm 4$ mrad

<b>Detektorbox</b>	Kanäle	355 nm (Aerosol) UV-Fernfeld (Ozon) UV-Nahfeld (Ozon)
	Detektoren	Photomultiplier ( Hamamatsu R5600)
	Quanteneffizienz (Detektoren)	$\sim 20 \%$
	Übertragung (digital)	14-bit, 10 MHz (Fernfeld, 355 nm) 12-bit, 30 MHz (Nahfeld)

**Tabelle 6-3: Empfangseinheit des TropOLEX-Systems**

## 7. Messungen

Im Rahmen dieser Arbeit wurden zunächst Testmessungen vom Boden aus durchgeführt. Im Vordergrund standen dabei die Qualität der DIAL-Messungen und die Zuverlässigkeit des UV-OPO in Bezug auf konstante Leistung und Wellenlängenstabilität im Feldexperiment. Darauf folgend wurden zwei Flugzeugmesskampagnen durchgeführt, bei denen gezeigt werden konnte, dass das System technisch sehr zuverlässig im Flugzeug betrieben werden kann und Daten mit relativ hoher Auflösung liefert.

#	Messung	Zeit (UTC)	Dist. [km]	Zusammenfassung
1	Boden 30.07.2002	15:10 - 22:35	--	Grenzschichthöhe bei 1,6 – 2,2 km (MSL); homogene O <sub>3</sub> -Verteilung; O <sub>3</sub> -konz. innerhalb der PBL: 65–100 nmol/mol, oberhalb 50–70 nmol/mol
2	Boden 31.07.2002	8:10 – 15:15	--	Grenzschichthöhe bei etwa 2,2 km (MSL); homogene O <sub>3</sub> -Verteilung; O <sub>3</sub> -konz. innerhalb der PBL: 70–105 nmol/mol, oberhalb 40–65 nmol/mol
3	Flugzeug 23.08.2002	10:30 – 11:15	180	Flugroute innerhalb der PBL; in tieferen Regionen deutlich geringere O <sub>3</sub> -Konz. (>35 nmol/mol) als in höheren Schichten (<80 nmol/mol); keine Aerosolgradienten
4	Flugzeug 28.08.2002	13:20 – 15:45	490	Flugroute innerhalb der PBL; in tieferen Regionen deutlich geringere O <sub>3</sub> -Konz. (>50 nmol/mol) als in höheren Schichten (<85 nmol/mol); viele Wolken
5	Flugzeug 30.08.2002	11:05 – 13:45	540	Flugroute innerhalb der PBL; in tieferen Regionen geringere O <sub>3</sub> -Konz. (>40 nmol/mol) als in höheren Schichten (<80 nmol/mol); im Inntal recht homogene O <sub>3</sub> -Verteilung; viele Wolken
6	Flugzeug 16.06.2003	11:55 – 14:25	750	Flugroute teilweise oberhalb der PBL; rel. homogene Verteilung der O <sub>3</sub> -Konz. zwischen 40 und 110 nmol/mol; teilweise stark ausgeprägte Aerosolgradienten
7	Flugzeug 23.06.2003	7:30 – 10:45	850	Flugroute innerhalb der PBL; sehr homogene Verteilung der O <sub>3</sub> -Konz. mit Werten von 50 bis 60 nmol/mol; erhöhte O <sub>3</sub> -Konz. über Augsburg und München (80–85 nmol/mol)
8	Flugzeug 23.06.2003	13:05 – 14:50	470	Flugroute innerhalb der PBL; sehr homogene Verteilung der O <sub>3</sub> -Konz. von 40 bis 75 nmol/mol; keine Aerosolgradienten

**Tabelle 7-1: Übersicht der durchgeführten Messungen mit fast 14 Flugstunden, bei denen mehr als 3200 km zurückgelegt wurden (MSL: Mean Sea Level; PBL: Planetary Boundary Layer).**

Die Messdaten werden mit 10 MHz Taktrate aufgezeichnet, was einem theoretischen vertikalen Auflösungsvermögen von 15 m entspricht. Bei der Auswertung werden diese Rohdaten vertikal meist über 220 bzw. 370 m, gemittelt. Für jeweils zwei Laserschüsse ergibt sich ein höhenaufgelöstes Ozonprofil. Diese unabhängigen Profile werden wiederum horizontal über 10 bis 30 s gemittelt.

Bei den dargestellten Rückstreumessungen (296 nm bzw. 355 nm) ist zu beachten, dass diese unkorrigiert sind, d.h. weder die Extinktion noch der Ozongehalt wurden dabei berücksichtigt. Diese Messungen (355 nm) bzw. Darstellungen (296 nm) dienen dazu, evtl. vorhandene Aerosolgradienten zu erkennen, da diese die Ergebnisse der Ozonmessung stark beeinflussen und Korrekturen erforderlich machen (Kapitel 8.1.4).

## 7.1 Ozonmessungen vom Boden

Die im Folgenden gezeigten Messungen vom 30. und 31.07.2002 wurden am Institut für Physik der Atmosphäre (IPA) des DLR Oberpfaffenhofen durchgeführt. Es wurden unter Anderem zwei Messungen mit einer Dauer von jeweils über 7 Stunden gemacht, bei denen das System sehr zuverlässig arbeitete.

Zu diesem Zweck wurde das TropOLEX auf dem Dach des IPA Gebäudes in einer Beobachtungskuppel (Abbildung 7-1) aufgebaut. Das System wurde für die Bodenmessungen nur insofern modifiziert, als dass die Auskopplung der Messwellenlängen nach oben stattfand und dementsprechend auch das Teleskop nach oben ausgerichtet war.

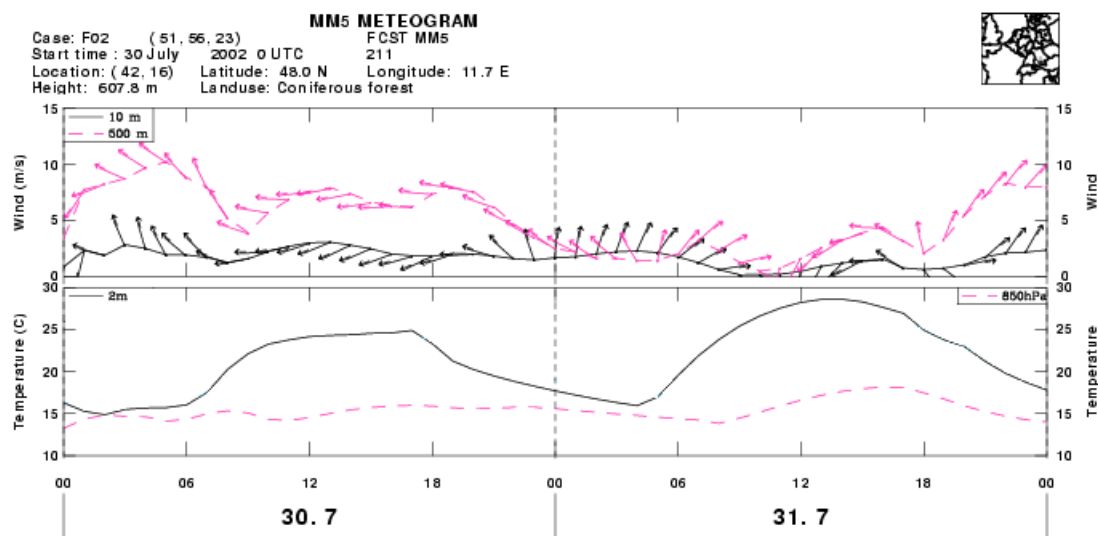


**Abbildung 7-1:** Die Lidarkuppel für atmosphärische Messungen, auf dem Dach des Instituts für Physik der Atmosphäre (IPA) in Oberpfaffenhofen.

Innerhalb der planetaren Grenzschicht (siehe Abbildung 2-1) ist der Ozongehalt in den Sommermonaten meist relativ hoch. In diesem Bereich ist während der Messung sehr viel Laserleistung vorhanden, womit auch ein sehr starkes Rückstreusignal verbunden

ist. Bedingt durch die hohe O<sub>3</sub>-Konzentration ist aber auch die Absorption sehr groß, was in der freien Troposphäre mit niedrigerem Ozongehalt dazu führt, dass die Laserleistung und damit das Rückstreusignal sehr gering ist. Diese Tatsache spiegelt sich auch in den Messergebnissen wieder, was an einem relativ hohen Rauschanteil oberhalb der Grenzschicht zu erkennen ist, da das Lidar-Signal mit  $1/r^2$  abnimmt.

An den beiden Messtagen (Di. & Mi.) waren die Wetterbedingungen in Oberpfaffenhofen für eine DIAL-Messung sehr gut geeignet. Der ab Donnerstag einsetzende Dauerregen ließ aber keine weiteren Messungen mehr zu. Nahezu in ganz Europa, einschließlich des Mittelmeerraums, bestimmte subtropische Luft das Wetter. Die Großwetterlage wurde durch eine nordwärts ziehende Warmfront über Skandinavien und das Tief HANNE, welches sich als Kaltfront über die Britischen Inseln über Frankreich und Spanien nach Osten bis Südosten verlagerte, bestimmt. Auf der kalten Seite der Front entwickelte sich ein größeres Regengebiet, welches dann ab Donnerstag für heftigen Niederschlag sorgte [Berliner Wetterkarte 31.07.02].



**Abbildung 7-2:** Die modellierten Temperatur- und Windbedingungen an den beiden Messtagen 30. und 31.07.2002 in München für unterschiedliche Höhen (Wind 10 m und 500 m; Temp. 2 m und 850 hPa) [RIU]. Die Pfeilrichtung im oberen Teil der Grafik stellt die Windrichtung dar.

An den beiden Messtagen sorgte eine stabile Hochdrucklage mit geringen Luftbewegungen dafür, dass regionale Luftbewegungen wie 'alpines Pumpen' sich stark bemerkbar machten. Dies geht auch aus den errechneten Winddaten des MM5-Modells für München in Abbildung 7-2 hervor, wie man an den Pfeilen für die Windrichtung sehen kann. Am 30.07. herrschte tagsüber vorwiegend eine Strömung aus östlicher Richtung mit Windgeschwindigkeiten von 3-4 m/s am Boden und etwa 5-10 m/s in 500 m Höhe. Am 31.07. war das alpine Pumpen noch etwas ausgeprägter, was an der Windrichtung in Abbildung 7-2 deutlich zu erkennen ist. Die Tageshöchsttemperaturen betrugen fast 30 °C und sanken im Laufe der Nacht vom 30.07. auf den 31.07. noch während der Messung auf 18 °C ab.

Die am Boden zu erwartenden maximalen Ozonwerte im Bereich um München, lagen laut der Vorhersage des Rheinischen Institut für Umweltforschung (RIU), zwischen

120 und 180  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ , was einem Mischungsverhältnis von etwa 60 – 90 nmol/mol entspricht.

Die durchschnittliche Ausgangsenergie des Systems wurde auf etwa 7 mJ reduziert, um den PMT im Nahfeldbereich nicht zu übersteuern. Die Wellenlängen wurden online mit einem an ein Notebook angeschlossenen Spektrometer überwacht. Sobald die Betriebstemperatur der Scannermotoren erreicht war, mussten während beider Messtage, mit jeweils einer Messdauer von über sieben Stunden, die Galvoscanter für die Kristallwinkel nicht mehr nachjustiert werden. D. h., die Wellenlängenvariation im UV war geringer als  $8 \cdot 10^{-2}$  nm (siehe Kap. 8.1).

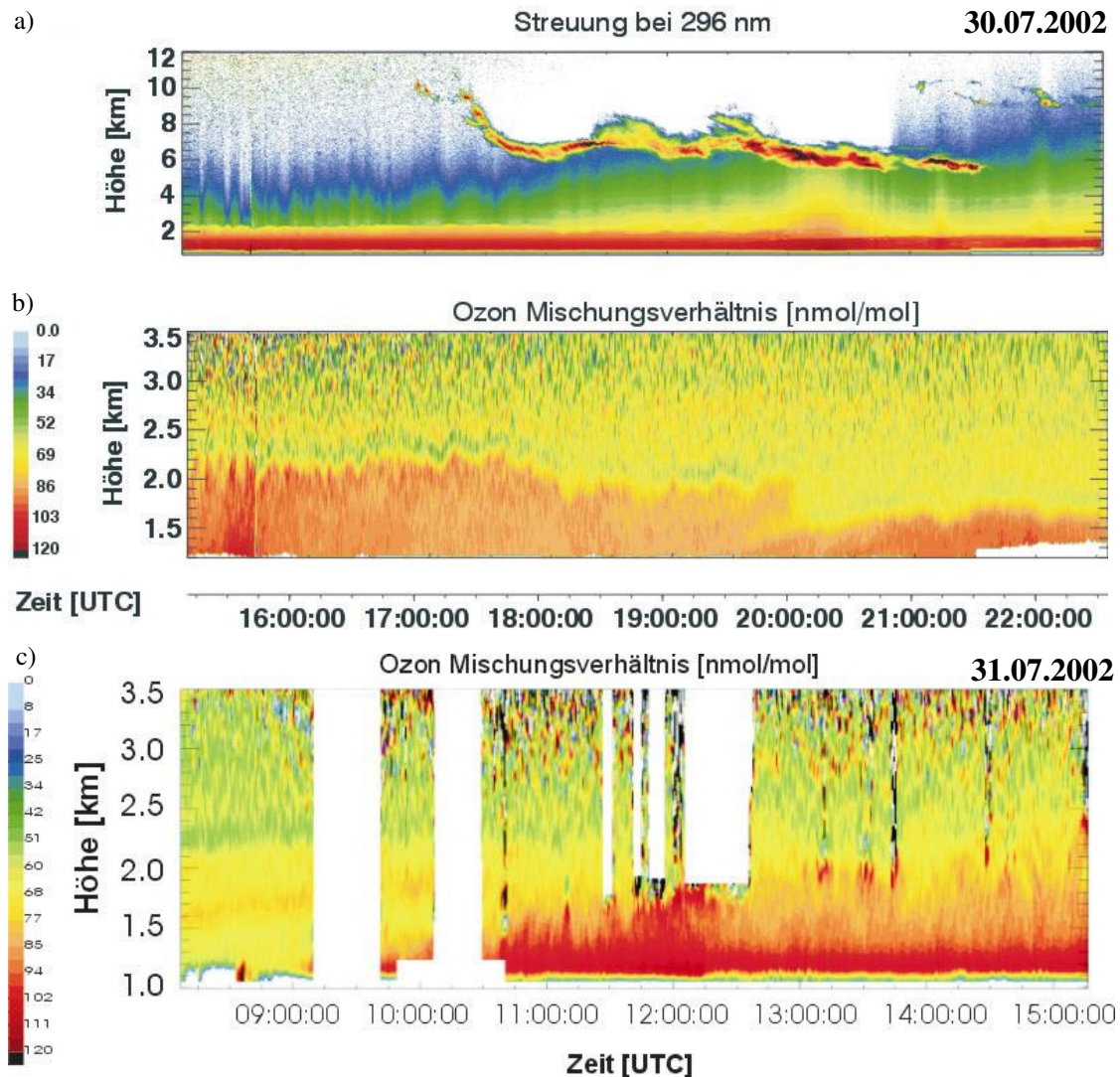
Die in Abbildung 7-3 dargestellten DIAL-Daten haben eine vertikale Auflösung von 220 m und sind zeitlich über 30 s, also 150 Einzelmessungen, gemittelt. Die Höhe ist in Kilometer über Normal Null (NN) angegeben und die Zeit in UTC (im Sommer: UTC + 2 Std. = lokale Zeit) aufgetragen. Als Index für die Ozonkonzentration wird der Farbkeil auf der rechten Seite des Bildes verwendet.

Auf dem unkorrigierten Rückstreubild (Abbildung 7-3 a) des Offlinekanals sieht man sehr deutlich eine Wolkenschicht in etwa 10 km Höhe, die sehr schnell auf 6 km absinkt. Auch ist gegen 20:00 Uhr UTC eine erhöhte Rückstreuung zu beobachten, die mit einer Winddrehung korreliert ist. Diese Erhöhung ist entweder auf das Einfließen von stärker aerosolbelasteter Luft zurückzuführen oder auf eine Zunahme der Luftfeuchtigkeit, die ein Aufquellen der hygroskopischen Aerosolteilchen zur Folge hat, welche dann im Rückstreubild deutlicher sichtbar werden.

Die Ozonmessung vom 30.07.02 (Abbildung 7-3 b) wird optisch durch die Grenzschicht bis etwa 2200 m dominiert. Deutlich zu sehen sind dort auch einzelne Fluktuationen an der Oberkante der Grenzschicht, hervorgerufen durch thermische Bewegungen der Luft. Die groben Strukturen oberhalb der Grenzschicht sind mit großer Wahrscheinlichkeit auf real vorhandene Schichtungen zurückzuführen, allerdings sind die Dimensionen, in den sie erscheinen, wahrscheinlich nicht der wirklichen Situation entsprechend. Die in der linken oberen Ecke zu sehenden Fluktuationen, sind mit hoher Wahrscheinlichkeit nur Rauschen und das direkt oberhalb der Grenzschicht zu sehende Minima in der Ozonkonzentration ist mit großer Sicherheit nur ein systematischer Fehler, hervorgerufen durch einen starken Aerosolgradienten am Übergang von der Mischungsschicht in die freie Troposphäre (siehe Kapitel 8). Unterhalb der Inversion, weist allerdings nichts auf einen stärkeren Aerosolgradienten hin, weshalb hier auf eine Korrektur in der Auswertung verzichtet wurde.

Innerhalb der Grenzschicht ist das Ozon sehr homogen verteilt und die zeitliche Variation der Konzentration reicht von anfänglich fast 100 nmol/mol bis gegen 20:00 Uhr UTC etwa 65 nmol/mol. Im Laufe der Nacht nimmt dann die Ozonkonzentration wieder zu, bis auf etwa 85 nmol/mol gegen Ende der Messung um 22:30 Uhr UTC.





**Abbildung 7-3: Ergebnisse der DIAL-Messung vom Boden aus, am 30. und 31. Juli 2002. Grafik a) zeigt die nicht extinktionskorrigierte Rückstreuung bei 296 nm. Die Grafiken b) & c) zeigen die Ozonkonzentration an den beiden Messtagen. Zu beachten sind die unterschiedlichen Höhenskalen. Die Auflösung der Ozonmessung beträgt 220 m vertikal, bei einer zeitlichen Mittelung über 30 s.**

Oberhalb der Grenzschicht bewegt sich die Konzentration um die 50 nmol/mol und in einigen Spitzen sogar bis 70 nmol/mol. Im Laufe des Abends sinkt die Grenzschicht dann langsam ab, wobei ein kleinerer Knick um 18:00 Uhr UTC zu sehen ist, der auf den Sonnenuntergang hindeutet. Ein größerer Abfall der Grenzschichthöhe ist gegen 20:00 Uhr UTC zu sehen, der zusammen mit den Winddaten darauf schließen lässt, dass die vorher herangetragenen, aufgeheizte Luftmassen aus München nun durch kühlere, ländliche Luftmassen, die aus Süden eingetragen werden, ersetzt wurden. Dies führt einerseits zu einer Absenkung der Grenzschicht und zum anderen sorgt es dafür, dass die Ozonkonzentration im Laufe der Nacht zunimmt, da die neuen Luftmassen eine höhere  $O_3$ -Belastung aufweisen. Ein weiterer Hinweis auf diese neu eingetragenen Luftmassen, ist das bereits oben erwähnte Ansteigen der Aerosolrückstreuung.

Am Morgen des 31.07.02 frischt der Wind wieder leicht auf und dreht dabei von Süd auf West, was wiederum bedeutet, dass neue Luftmassen herangeführt werden. Die Grenzschicht ist nicht mehr ganz so klar wie am Vortag zu erkennen, aber immer noch sehr deutlich (Abbildung 7-3 c). Die anfänglich schon relativ hohe Ozonkonzentration von etwa 70 nmol/mol (8:00 Uhr UTC) fängt, auf Grund der starken Sonneneinstrahlung, bereits gegen 9:00 Uhr UTC an zu steigen und erreicht im Laufe des Tages etwa 100 nmol/mol. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Zunahme der Konzentration von unten nach oben verläuft und es kaum eine Durchmischung mit den Luftmassen oberhalb der Grenzschicht gibt (vgl. Abbildung 1-1).

In den Messdaten des Ozons sind einige Artefakte (weiße Balken) zu erkennen. Die meisten dieser Artefakte stammen von der Kontrolle und Optimierung der Laserjustierung und der Überlappung. D.h. durch die Überprüfung der Ausgangsenergie oder eines Scans der Auskopplung in x- und y-Richtung und der dann gegebenenfalls notwendigen Nachjustierung. Unter anderem sind aber auch der Q-Switch des Lasers, sowie der THG- und SHG-Kristall einer gewissen thermischen Drift unterworfen, was zu einem Abfall der Pump- bzw. Mischenergie führen kann.

Andere Artefakte werden durch Wolken hervorgerufen. Ausgedehnte Wolken begrenzen die Messungen nach oben, da sämtliche Laserleistung hier gestreut wird. D.h. die Werte oberhalb solcher Wolken sind stark verrauscht und können kaum noch sinnvoll ausgewertet werden (31.07.2002 11:45 bis 12:00 Uhr UTC in 1800 m MSL). Kleinere, dünnere Wolken äußern sich im Rückstreubild durch einen dunklen Fleck, der hinter der eigentlichen Wolke von einem länglichen, dunkleren Streifen begleitet wird, was durch die Mittelung in der Auswertung hervorgerufen wird. Im Ozonbild sind solche Wolken an einem dunklen Streifen (scheinbar hoher O<sub>3</sub>-Konzentration) zwischen DIAL und Wolke und einem helleren Streifen (scheinbar niedriger O<sub>3</sub>-Konzentration) dahinter zu erkennen.

Die erfolgreich verlaufenen Bodenmessungen haben gezeigt, dass die Qualität der Daten in Bezug auf die Auflösung und die technische Zuverlässigkeit des Systems sehr hoch sind. Auf Grund dieses Ergebnisses wurde das TropOLEX in der Cessna 208 des DLR integriert.

## 7.2 Flugzeugplattform Cessna 208

Die vorgesehene Systemplattform ist eine modifizierte einmotorige Cessna 208B Grand Caravan ohne Druckkabine. Die max. Flughöhe beträgt 7600 m und die Höchstgeschwindigkeit 330 km/h. Eine Sauerstoffanlage ist vorhanden und wird bei geplanten Flügen in und oberhalb einer Höhe von 10000 ft auch eingebaut und genutzt. Die Reisegeschwindigkeit beträgt 290 km/h und die Reichweite 2154 km in einer Höhe von 18000 ft bzw. 1900 km in einer Höhe von 10000 ft. Damit ergibt sich eine max. Flugdauer von 6:35 h bzw. 7:30 h. Das Leergewicht beträgt 2,3 t und die maximale Startmasse 3,97 t, womit sich eine maximale Zuladung von 1,67 t ergibt. An Strom stehen max. 200 A bei 28 V zur Verfügung.

a)



b)



**Abbildung 7-4: Cessna 208B Grand Caravan. In Bild a) sind die beiden Lucken im Rumpfboden für Instrumente und Kameras zu sehen. Bild b) zeigt die Cessna mit dem im Heck eingebauten TropOLEX.**

Die Cessna des DLR besitzt zwei Öffnungen an der Unterseite des Rumpfes (Abbildung 7-4 a) für Messgeräte und Kameras. Zusätzlich ist noch ein sog. IGI-System auf der Cessna installiert. Das IGI-System ist ein modernes RT-DGPS/INS System (IGI CCNS4/Aero-control IIb), das in Kombination mit einem FUGERO OmniStar DGPS Empfänger eine hochpräzise Navigation und Positionierung erlaubt. Vereinfacht kann man sagen, dass das System aus einem Kreisel und einem erweiterten, hochpräzisen GPS-Empfänger besteht, um die Position und Fluglage zu bestimmen. Dabei werden unter anderem auch die Roll- und Nickbewegungen des Flugzeuges aufgezeichnet, die dann später in die Auswertung der DIAL-Daten mit einbezogen werden, um diese korrigieren zu können. Die Synchronisation mit der Datenerfassung des TropOLEX geschieht über die GPS-Zeit, welche mit einem in der Datenerfassung integrierten GPS-Empfänger noch zusätzlich aufgezeichnet wird. Dabei ist zu beachten, inwieweit bei beiden Systemen Schaltsekunden (bis Okt. 2002: 13 s) eingefügt wurden.

Für die mechanische und elektrische Integration des Systems in das Flugzeug wird etwa ein Arbeitstag benötigt, wobei noch mal ein weiterer Tag für die Justierung der Optiken und die Vorjustierung der Auskopplung zu rechnen ist. Die endgültige

Ausrichtung der Auskopplung findet im Flug statt, da hier auf das Lidar-Signal selbst optimiert werden kann.

Eingebaut wird das DIAL-System mit dem Teleskop über dem hinteren Schacht, wie in Abbildung 7-4 b und Abbildung 7-5 zu sehen ist. Das Rack mit der Datenerfassung, der Laserkühlung und dem Power Supply ist auf der rechten Seite (in Flugrichtung) hinter dem Piloten und der Sauerstoffanlage eingebaut.



**Abbildung 7-5: Das TropOLEX-System im Heck der DLR Cessna 208B Grand Caravan.**

Da die Messkampagnen bisher nur im Sommer statt fanden und somit auch in größerer Höhe immer noch akzeptable Temperaturen zwischen 0 °C und 10 °C herrschten, bestand noch keine Notwendigkeit für ein spezielles Ausschuss- und Messfenster in der Rumpfoffnung. Das System wird am offenen Schacht betrieben. Um das System vor Verunreinigungen und evtl. Steinschlag bei Start und Landung zu schützen, kann der Schacht mit einer Art Schiebetür verschlossen werden.

In der durchschnittlichen Flughöhe der Messflüge (Flugfläche 95, etwa 3000 m) ist für Piloten und Crew noch kein zusätzlicher Sauerstoff vorgeschrieben und die Operateure müssen keinem Druckkammertest unterzogen werden, was für größere Höhen gesetzlich vorgeschrieben ist. Auch ist die Wahl der Flugroute etwas freier, da hier noch kein Flugplan verbindlich ist und die Piloten somit auch flexibler auf die für die Messungen erforderlichen Änderungen reagieren können.

### 7.3 Flugzeugmesskampagnen

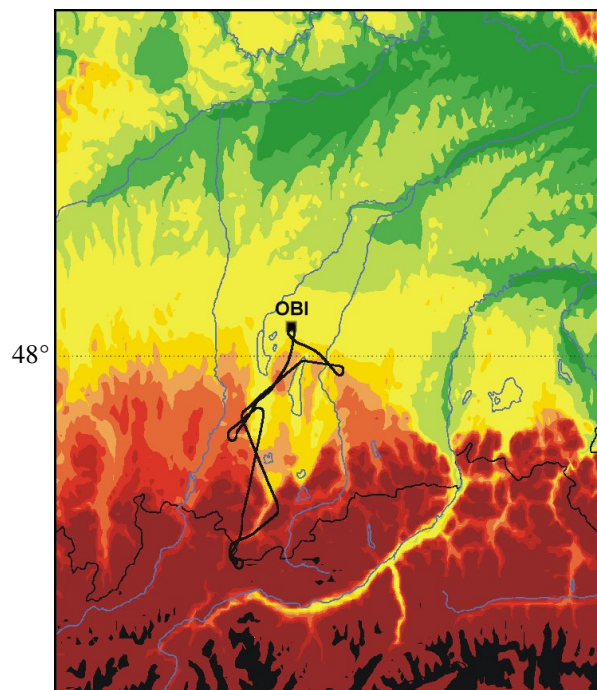
In den Jahren 2002 und 2003 fand jeweils für die Dauer von zwei Wochen eine Flugmesskampagne von Oberpfaffenhofen aus statt. Der Zeitraum der Kampagnen



musste lange im Voraus festgelegt werden und war somit dem aktuell herrschenden Wettergeschehen unterworfen. Im speziellen heißt das, dass witterungsbedingt nur drei Flüge pro Kampagne durchgeführt werden konnten. Die Flüge waren darauf ausgelegt, möglichst starke Ozongradienten zu detektieren und dabei einige Bodenmessstationen zu überfliegen, um die Daten vergleichen zu können. Die Auswertung der Daten bezüglich des statistischen Fehlers ist in Kap. 8.2 dargestellt. Eine Übersicht der durchgeführten Messflüge ist in Tabelle 7-1 zu sehen.

### **1. Flug 2002 – 23.08.02**

Am 23. August 2002 fand ein Flug vom Flugplatz Oberpfaffenhofen (OBI), über den Hohenpeißenberg zur Zugspitze und anschließend auf der gleichen Route zurück statt. Auf dem Rückweg wurde noch zusätzlich der Starnberger See und die A8 überflogen (siehe Abbildung 7-6). Die Auswahl der Strecke fand aufgrund von vorhandenen Bodenmessstationen des DWD am Hohenpeißenberg, des IMK-IFU in Garmisch, auf der Zugspitze und dem nebenliegenden Wankgipfel statt.



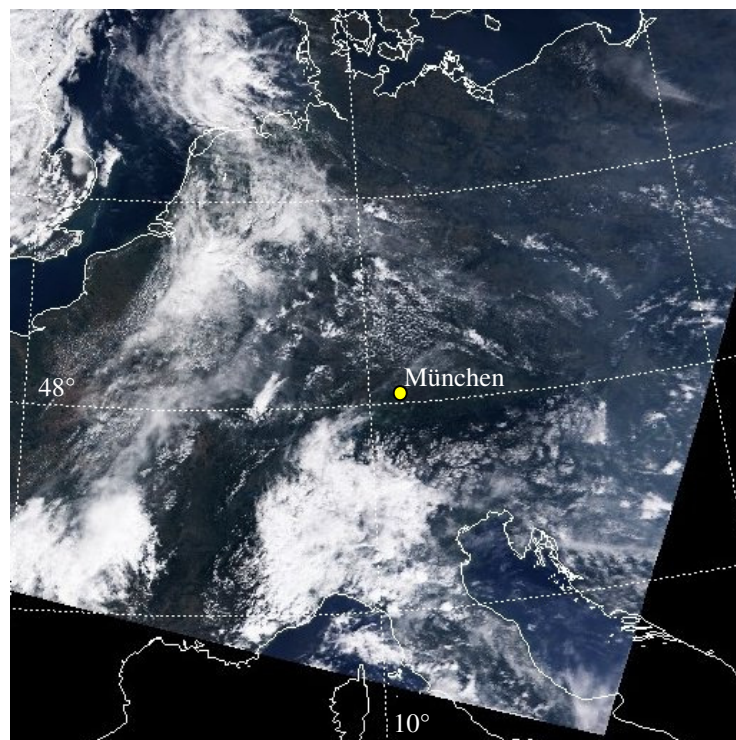
**Abbildung 7-6: Flugroute am 23. Aug. 2002. Ausgangspunkt ist Oberpfaffenhofen (OBI).**

Die meteorologische Situation wurde von der Passage der schwachen Kaltfront des Tiefs NETTI bestimmt. In der rückseitig erwärmten subpolaren Meeresluft bildeten sich am Nachmittag einige kleine Gewitterzellen, die sich von Südost nach Nordwest verlagerten. Auf der Flugroute in Richtung Garmisch und zurück waren nur vereinzelt Wolken anzutreffen. Am Rand der Alpen herrschte aber erhebliche Quellbewölkung. Auf dem Satellitenbild (Abbildung 7-7) vom 23.08.02 um 12:50 Uhr (lokal) sieht man

sehr gut, dass der Süden Deutschlands zum großen Teil wolkenfrei ist, aber von Südwesten her ein großer Wolkenteppich dabei ist, nach Deutschland zu strömen, aber an der Alpennordseite noch aufgestaut wird [Berliner Wetterkarte 23.08.02].

Die Prognosen des Rheinischen Instituts für Umweltforschung (RIU), ließen für die gesamte Flugroute eine Konzentration des bodennahen Ozons von etwa 60 bis 90 nmol/mol erwarten.

Während des gesamten Messfluges lief das System problemlos und zuverlässig und nachdem die Scannermotoren am Boden schon warmgelaufen waren, waren auch während des Fluges keine Abweichungen der Wellenlänge festzustellen. Dennoch wurden die Wellenlängen und der Überlapp ständig kontrolliert und die Auskoppelspiegel bei Bedarf nachgestellt.



**Abbildung 7-7: Satellitenbild vom 23. August 2002 10:50 Uhr UTC.**

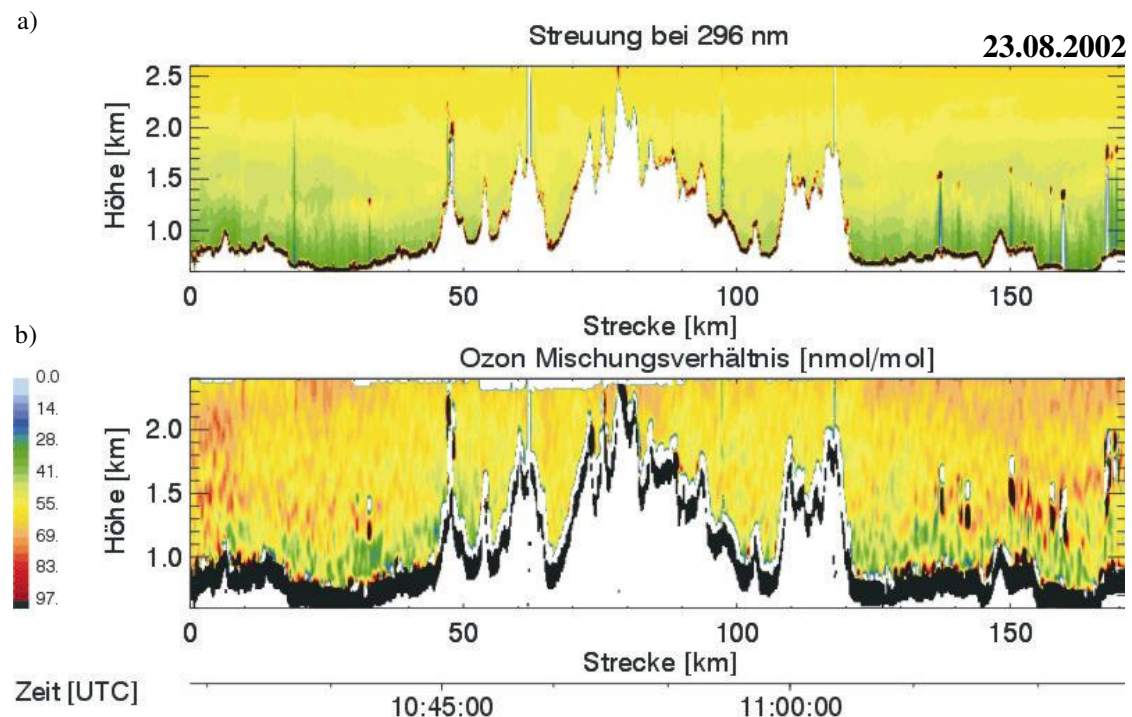
In Abbildung 7-8 a ist das unkorrigierte Rückstreusignal der Offlinewellenlänge von 296 nm dargestellt. Es dient als Anhaltspunkt in Bezug auf eventuell vorhandene Artefakte, wie z.B. die hier vorhandenen und als dunkle Flecken erscheinenden Wolken. Am unteren Bildrand ist das Bodenrelief mit dem Zugspitzmassiv im Zentrum zu sehen.

In Abbildung 7-8 b ist das Ozonmischungsverhältnis farbcodiert in nmol/mol dargestellt. Die zeitliche Mittelung in der Horizontalen beträgt 10 s. Bei einer durchschnittlich geflogenen Geschwindigkeit von etwa 70 m/s entspricht das einer Auflösung von 700 m. Die vertikale Mittelung beträgt 220 m, weshalb das Bodenrelief sehr breit erscheint. Deutlich ist zu erkennen, dass die Ozonkonzentration in der Höhe

größer ist als am Boden, ebenso ist auch die Symmetrie von Hin- und Rückflug mit der Zugspitze als Umkehrpunkt zu erkennen. Diese Symmetrie in den Messdaten ist ein gutes Indiz dafür, dass die Messungen reproduzierbar sind.

Bei näherer Betrachtung ist anhand der Ozonkonzentration zu erkennen, dass die Grenzschicht durch das stark orographisch geprägt Terrain beeinflusst ist. Beispielsweise ist bei einigen Luftmassen deutlich zu sehen, wie sie an den Berghängen nach oben steigen (z.B. gegen 10:45 Uhr UTC).

Im Bereich Oberammergau – Garmisch (Kilometer 30-45) sind in Bodennähe etwa 35 nmol/mol (grün) Ozon in der Atmosphäre enthalten und in den darüber liegenden Schichten zwischen 55 und 80 nmol/mol. Die Vorhersagen des RIU sagen in diesem Bereich für die bodennahen Schichten eine etwas höhere Konzentration von 60 – 90 nmol/mol voraus.



**Abbildung 7-8:** Darstellung des unkorrigierten Rückstreubild bei 296 nm (oben) und der Ozonmessung (unten). Der Farbkeil links neben der Ozongrafik ist die Skala für das Mischungsverhältnis von Ozon in nmol/mol. Die Zentrale Erhebung in der Mitte der beiden Grafiken ist das Zugspitzmassiv, welches als Umkehrpunkt umflogen wurde. Die Auflösung beträgt 220 m vertikal und 700 m horizontal.

Dieser erste Messflug des TropOLEX dauerte etwa 45 Minuten, wobei über 180 km zurückgelegt wurden. Das System lief ohne jegliche Zwischenfälle und musste auch während des Fluges nicht nachjustiert werden. Die dabei gesammelten Daten besitzen, wie die Grafiken zeigen, eine hohe Auflösung und verdeutlichen das Potential des Systems bezüglich der Ozon- bzw. Grenzschichtüberwachung.

## 2. Flug – 28.08.02

Am 28. August 2002 fand ein weiterer Messflug von Oberpfaffenhofen über das Lechtal hinauf nach Augsburg bis zur Donau und anschließend über das Donautal bis Ingoldstadt und wieder zurück statt (Abbildung 7-9). Diese Route wurde zweimal abgeflogen, wobei eine räumliche Ausdehnung des Fluges aufgrund der Wolkensituation, nicht möglich war.

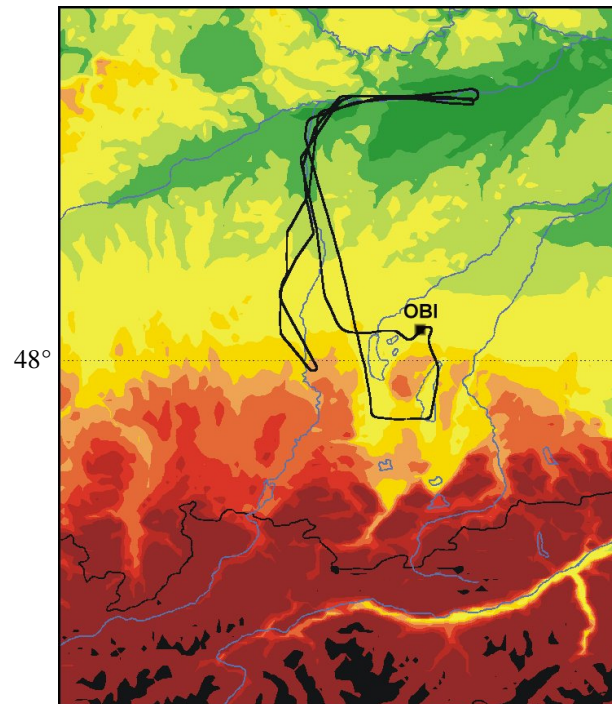


Abbildung 7-9: Flugroute der Cessna vom 28. August 2002

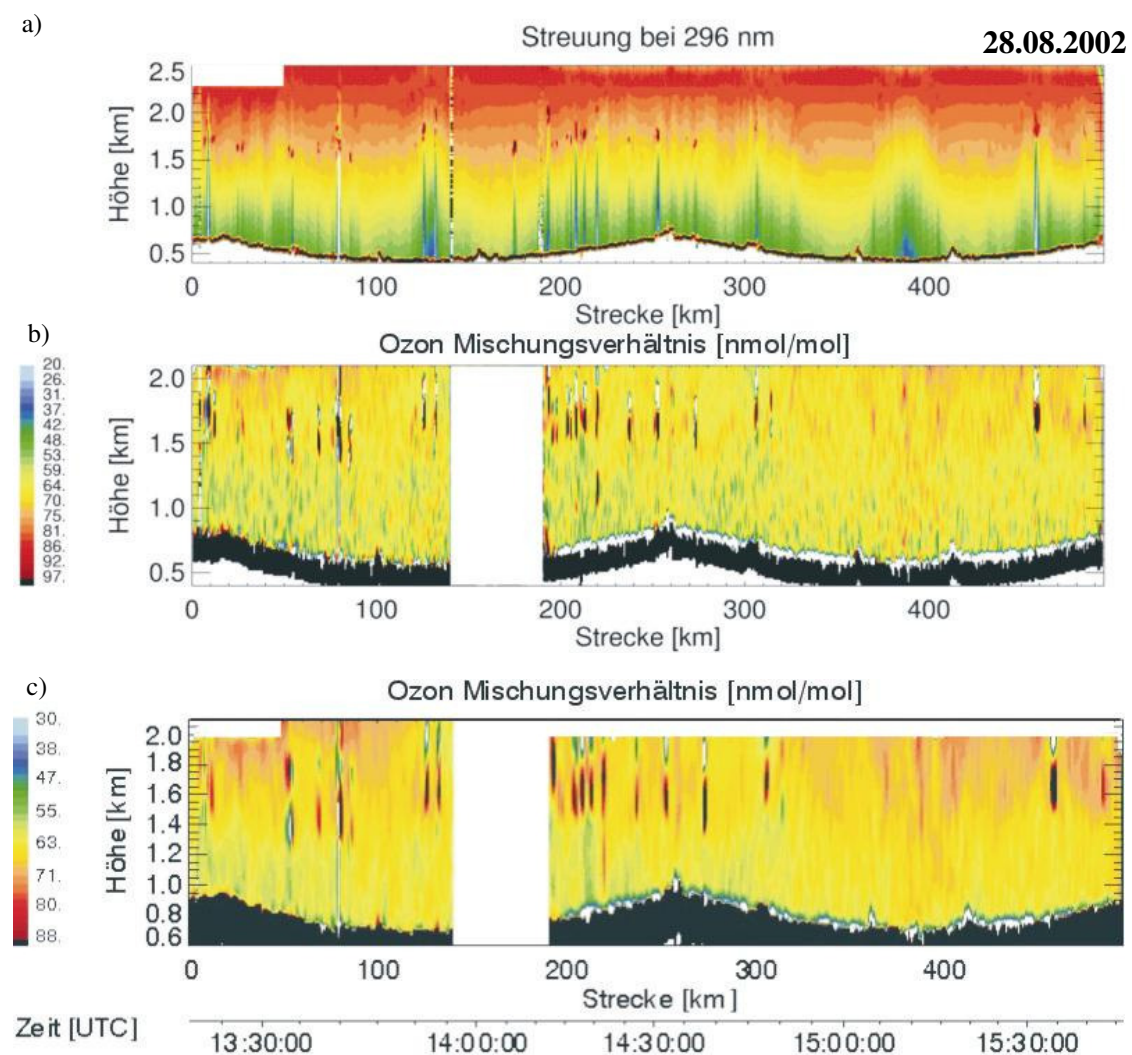
Die Wetterlage wurde durch das zentral über Deutschland liegende Tiefdruckgebiet ORNELLA bestimmt. In seinem Bereich bildeten sich in der Nacht vom 27. auf den 28.08. im Süden und im Mittelgebirgsraum zum Teil heftige Gewitter, wobei das Gewittertief nur langsam unter Auflösung nach Nordosten wanderte [Berliner Wetterkarte 28.08.02]. Da die meteorologische Situation für die nächsten Tage nicht sehr vielversprechend war und eher noch schlechter zu werden drohte, wurde trotz der herrschenden ungünstigen Wetterbedingungen ein Messflug durchgeführt. Das relativ wolkenarme Gebiet, in dem der Flug geplant wurde, blieb glücklicherweise lange genug erhalten, um die Messungen wie vorgesehen beenden zu können. Dennoch mussten einige kleinere Wolkenfelder umflogen werden, wie anhand der Flugroute zu sehen ist. Auf den Messbildern ist zu sehen, dass nur sehr wenig Grenzschichtbewölkung auf und unter der Flugroute zu finden war.

Die vom RIU vorhergesagten Bodenwerte von regional 30 bis 90 nmol/mol lassen dabei einen großen Spielraum bezüglich der Übereinstimmung mit den Messdaten des TropOLEX zu.



Bei der Auswertung der Messung wurde zum einen horizontal über ein Zeitintervall von 10 s gemittelt und da bei diesem Flug die Geschwindigkeit nur etwa 60 m/s betrug, entspricht dies einer horizontalen Auflösung von 600 m. Die vertikale Auflösung betrug dabei 220 m (Abbildung 7-10 b). Zum anderen wurde bei einer vertikalen Auflösung von 370 m noch horizontal über ein Zeitintervall von 20 s gemittelt, um das Rauschen zu verringern und die großen Strukturen deutlicher hervorzuheben.

Wie in Abbildung 7-9 zu sehen ist, wurde die Flugroute so gewählt, dass einige Abschnitte mehrfach überflogen wurden. Um 14:35 Uhr UTC ist in der Mitte der Abbildung 7-10 a-c, einer dieser Umkehrpunkte in Form einer fast symmetrischen Erhöhung zu erkennen. Auffällig ist hierbei die Symmetrie in der Ozonkonzentration, was wiederum ein gutes Indiz für die Reproduzierbarkeit der Daten ist.



**Abbildung 7-10: Messergebnisse vom 28.08.2002. Unkorrigiertes Rückstreubild des Offlinekanals bei 296 nm und Ozonmessungen mit unterschiedlicher Farbskala und Mittelung: b) 10 s horizontal (600 m) und 220 m vertikal; c) mit 20 s horizontal (1200 m) und 370 m vertikal.**

Im unkorrigierten Rückstreubild Abbildung 7-10 a sind keine starken Aerosolgradienten zu beobachten, was darauf schließen lässt, dass die Messung

vollständig innerhalb der Grenzschicht statt fand. Der weiße Streifen in der O<sub>3</sub>-Konzentration im Bereich von 13:55 bis 14:15 Uhr UTC ist auf eine Dejustierung der Auskopplung zurückzuführen. Die dunklen Punkte, gut erkennbar im Rückstreubild, sind Wolken, die auch entsprechend in den Ozonbildern zu sehen sind.

In Bodennähe konnte durchweg eine geringere Ozonkonzentration als in größeren Höhen festgestellt werden, wobei die Werte von teilweise 50 nmol/mol in Bodennähe bis 85 nmol/mol zwischen 1500 und 2000 m variierten. Bei einer größeren Mittelung von 20 Sekunden horizontal und 370 m vertikal ist dieses Ergebnis noch deutlicher zu beobachten, obwohl der Wertebereich der Konzentration auf 55 bis 75 nmol/mol zurück geht (Abbildung 7-10 c). Wegen der geringeren Dynamik durch die stärkere Mittlung, bei der die Maximalwerte geglättet werden, wurde hier auch eine andere Farbskala mit kleinerer Spanne gewählt. Die Fehler der Messungen werden in Kapitel 8 diskutiert.

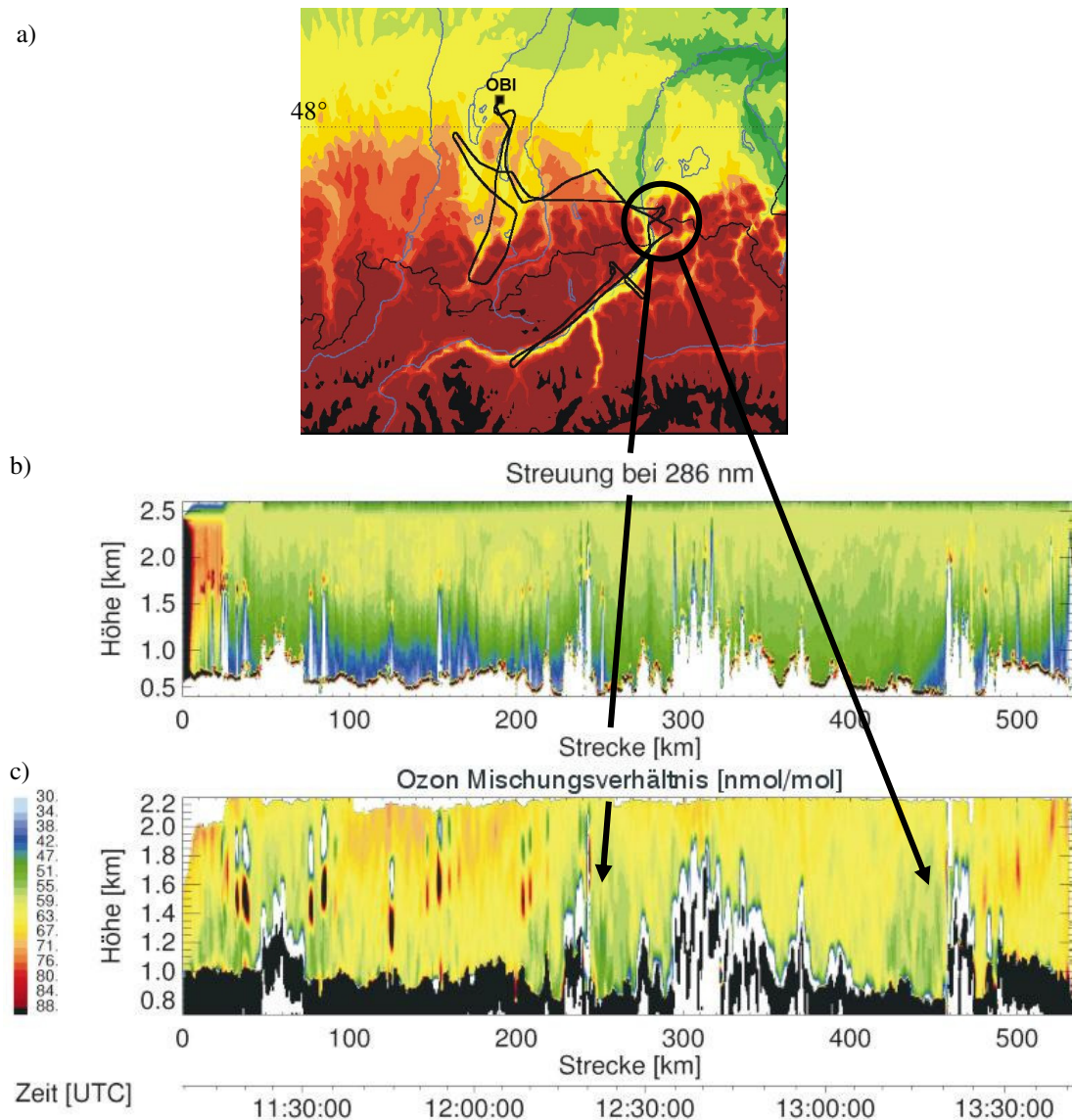
Abgesehen von der zeitweisen Dejustierung der Auskopplung, lief das System über den gesamten Flug mit einer Dauer von über zwei Stunden stabil, was sowohl die Ausgangsenergie als auch die Wellenlängenstabilität betrifft.

### **3. Flug – 30.08.02**

Der dritte Messflug fand am 30. August 2002 statt. Die Flugroute (Abbildung 7-11 a) führte von Oberpfaffenhofen direkt zur Zugspitze, anschließend nordwärts über den Hohenpeißenberg an den Alpen entlang in Richtung Osten bis zum Inntal. Dieses wurde südlich bis Innsbruck überflogen und dabei auch mehrfach gequert. Anschließend westwärts wieder an den Alpen entlang und über das Ostufer des Starnberger Sees zurück nach Oberpfaffenhofen. Insgesamt wurde dabei eine Strecke von annähernd 540 km in einer Zeit von etwas mehr als 2 ½ Stunden zurückgelegt, was einer durchschnittlichen Geschwindigkeit von knapp über 60 m/s entspricht.

Die Wetterlage am Freitag den 30. August 2002 war immer noch schwach durch das Tief ORNELLA geprägt, wobei sich aber nur in und um Brandenburg vereinzelt Gewitter entwickelten [Berliner Wetterkarte 30.08.02]. Der Süden und Osten Deutschlands war trocken und es wurden Temperaturwerte von 25 °C und mehr erreicht.

Die Bodenprognosen des RIU sagen für die überflogenen Regionen von Deutschland, Werte von 32 bis 90 nmol/mol vorher. Für das Inntal lagen die Werte der in-situ Bodenmessstationen des österreichischen Umweltbundesamtes um 12:00 Uhr (lokal) etwa bei 20 bis 40 nmol/mol (Abbildung 7-12). Die Messungen des TropOLEX im Inntal, fanden etwa von 14:30 bis 15:30 Uhr (lokal) statt. Die Messungen des österreichischen Umweltbundesamtes von 16:00 Uhr (lokal) zeigen einen Anstieg der Werte, im Vergleich zu den Messwerten von 12:00 Uhr (lokal), um etwa 20 nmol/mol auf 40 bis 60 nmol/mol.



**Abbildung 7-11: Flugroute der Cessna vom 30. August 2002 mit den Ergebnissen der Messungen. Oben die unkorrigierte Rückstreuung im Onlinekanal und unten die Ozonmessung mit einer horizontalen Mittelung von 20 s (1200 m) und einer vertikalen Auflösung 370 m. Herausgehoben sind der Ein- und Ausflug aus dem Inntal.**

Bei den Messungen des DIAL-Systems (Abbildung 7-11 c) sieht man zum einen, wie bei den beiden vorangegangenen Messungen auch schon, dass die Ozonkonzentration mit steigender Höhe zunimmt. Zum anderen wird aber auch sichtbar, dass relativ viele Wolken unterhalb des Flugweges lagen. Die Werte in Bodennähe liegen zwischen 40 und 75 nmol/mol, wobei die Werte im Inntal nur zwischen 50 bis 65 nmol/mol variieren. In der Höhe dagegen liegen die Ozonwerte durchgehend zwischen 60 und 80 nmol/mol. Ein erneutes Indiz für die Reproduzierbarkeit der Messwerte, sind die Werte am Eingang des Inntals (Kreis in Abbildung 7-11), da diese Region zweimal überflogen wurde und sowohl beim Einflug in das Inntal, als auch beim Verlassen, deutlich eine niedrige Ozonkonzentration erkennbar ist. Die im Inntal gemessenen Werte des TropOLEX stimmen mit denen der in-situ Messungen der Bodenstationen des österreichischen Umweltbundesamtes (Abbildung 7-12) relativ gut überein.

Die Auflösung der TropOLEX Messungen betragen 1200 m (20 s-Mittel) horizontal und 370 m vertikal.

Auch bei dieser Messung hat sich das System wieder als sehr zuverlässig erwiesen. Weder die Wellenlängen noch der Laser oder die Auskopplung mussten während des Fluges nachjustiert werden.

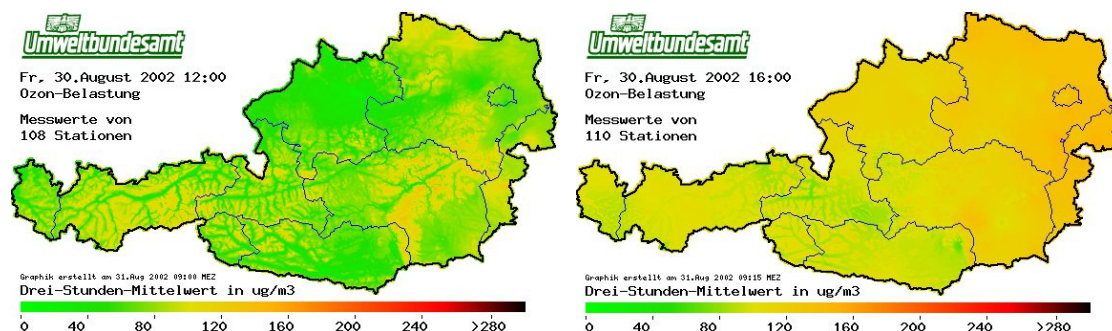


Abbildung 7-12: Messwerte des österreichischen Umweltbundesamtes von 12:00 und 16:00 Uhr (lokal), für Freitag den 30. August 2002 ( $2 \mu\text{g}/\text{m}^3 \approx 1 \text{ nmol}/\text{mol}$ ).

Während der zweiwöchigen Messkampagne in 2002 konnte die Eignung des Systems für flugzeuggetragene Messungen sehr gut gezeigt werden. Auch konnte im Rahmen der vorliegenden in-situ Werte der Bodenmessstationen eine gute Übereinstimmung nachgewiesen werden, was aber noch keine Validation darstellt. Zu diesem Zweck wurde eine weitere Kampagne für das folgende Jahr geplant.

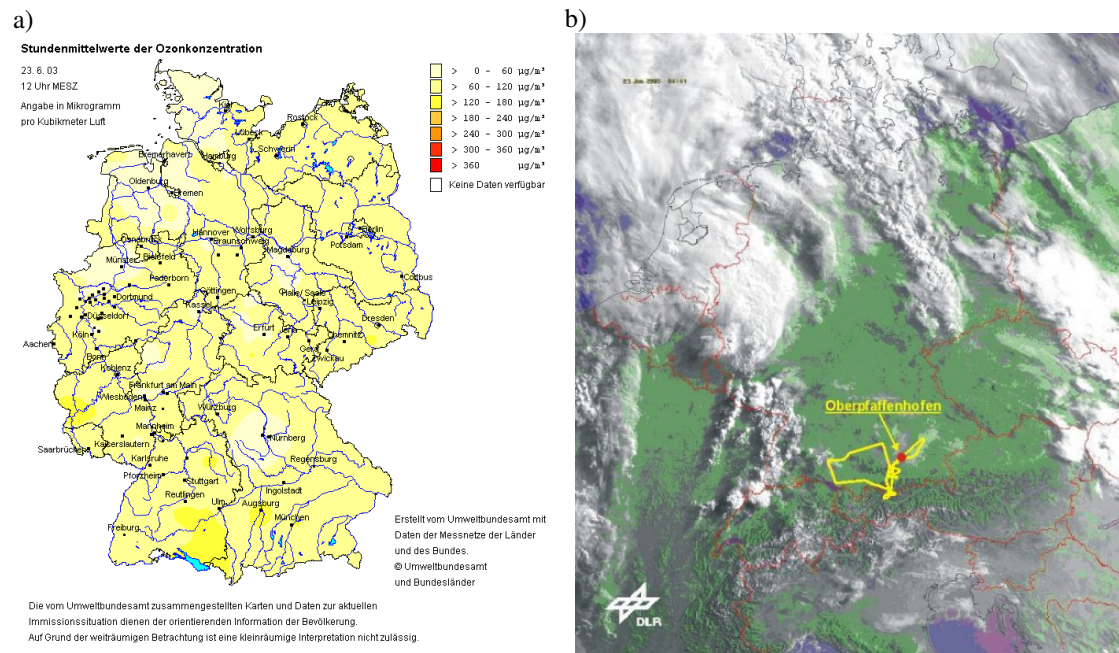
### Flugmesskampagne 2003

Die Messkampagne im Jahr 2003 war auf zwei Wochen angesetzt, von Dienstag den 10. Juni bis Montag 23. Juni. In dieser Zeit wurden insgesamt drei Messflüge durchgeführt. Ziel dieser Kampagne war die Validation der DIAL-Messungen, wozu die Flüge mit Messungen anderer Systeme koordiniert wurden und Daten von Bodenmessstationen herangezogen wurden.

Stellvertretend wird hier der Flug vom Vormittag des 23. Juni 2003 vorgestellt. Der Start erfolgte gegen 7:30 Uhr UTC und die Flugdauer betrug etwas über drei Stunden. Der erste Wegpunkt auf der Flugroute war der Hohenpeißenberg mit einer Messstation des DWD, an dem etwa 1 ½ Stunden zuvor eine Ozonsonde gestartet wurde. Der zweite Wegpunkt war das in der Nähe von Garmisch gelegene IMK-IFU, an welchem ein Boden-Lidar für Ozonmessungen in Betrieb war. Dabei wurde das IMK-IFU mehrfach überflogen um eine möglichst große Überlappung mit dem Boden-Lidar zu erreichen. Im Weiteren ging es über Kempten, Friedrichshafen (Bodensee), Oberschwaben und Saulgau bis zur Donau. Weiter über Illertissen, zum Ammersee und nochmals nach Garmisch, von wo aus noch ein Überflug über München statt fand



(siehe Abbildung 7-13 b). Alles in allem ein Flug von mehr als drei Stunden Dauer mit einer zurückgelegten Strecke von über 850 km.

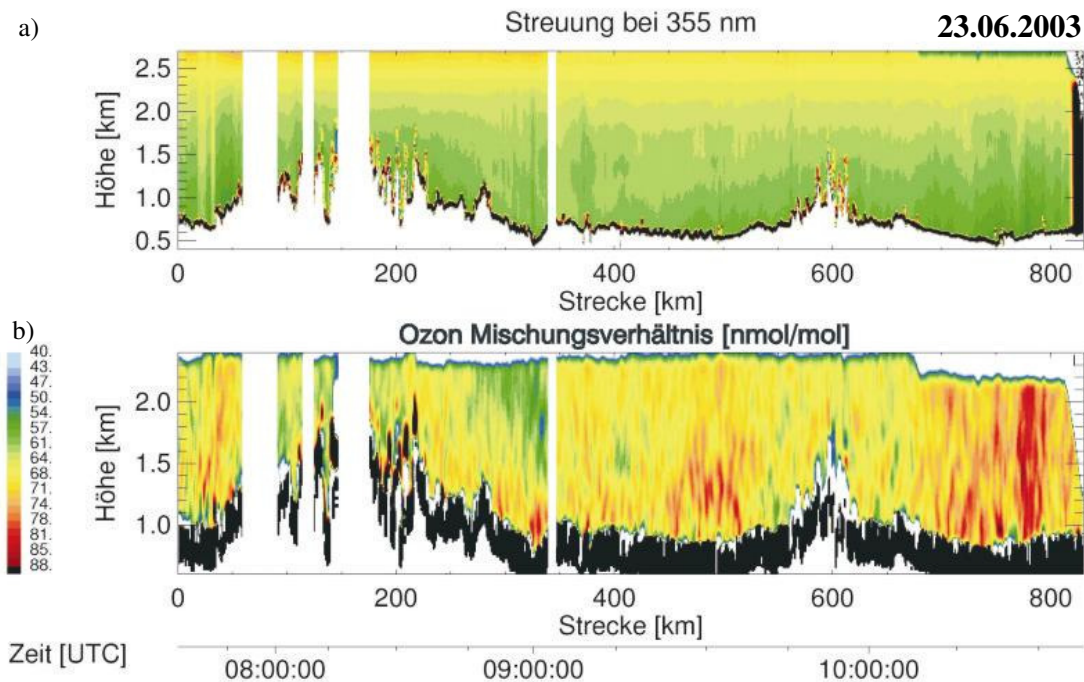


**Abbildung 7-13: a) Ozonmesswerte des Umweltbundesamtes von 12:00 Uhr MEZ am 23. Juni 2003 ( $2 \mu\text{g}/\text{m}^3 \approx 1 \text{ nmol}/\text{mol}$ ). b) Satellitenbild von 4:41 Uhr UTC mit Flugweg.**

Die Messwerte des Umweltbundesamtes von 12:00 Uhr MEZ (Abbildung 7-13 a) lassen für die Route eine Ozonbodenkonzentration, je nach Region, von 30 bis 90 nmol/mol erwarten, wobei fast alle Bodenmessstationen, die überflogen wurden, bis zum Mittag die Marke von  $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$  ( $\sim 60 \text{ nmol}/\text{mol}$ ) bereits erreicht bzw. teilweise schon überschritten hatten.

Das auf dem Satellitenbild (Abbildung 7-13 b) gut erkennbare Wolkenband hatte seinen Ursprung in sehr warmer tropischer Luft, die über Frankreich nach Süddeutschland zog und dazu beitrug, dass hier die Temperaturen, auch des Nachts, noch relativ hoch blieben und am morgen schnell anstiegen. So wurde in Freiburg (Breisgau) bereits am Morgen um 11:00 Uhr MEZ eine Temperatur von  $33^\circ\text{C}$  gemessen. Die Großwetterlage wurde von dem Tiefdruckwirbel URSINUS bestimmt – er zog in der Nacht über Irland Richtung Schottland und zog auf seiner Südostseite besagte heiße Luftmassen über Frankreich nach Süddeutschland transportierte [Berliner Wetterkarte 23.06.03].

In den Alpen war die Sicht anfangs noch sehr klar. Es waren zunächst nur wenige Wolken vorhanden, was sich aber schnell änderte. Je weiter die Flugroute nach Westen kam, umso schlechter wurde die Sicht, wobei fast ständig auf Höhe der Grenzschicht oder knapp unterhalb geflogen wurde. Erst auf dem letzten Stück über München war die Obergrenze der planetaren Grenzschicht deutlich über der Flughöhe der Cessna und es herrschte klare Sicht.



**Abbildung 7-14:** a) unkorrigierte Rückstreubild bei 355 nm. b) gemessene O<sub>3</sub>-Konzentration mit einer 21 s-Mittelung und einer vertikalen Auflösung von 370 m.

Das unkorrigierte Rückstreubild der TropOLEX Daten in Abbildung 7-14 a zeigt keine besonders stark ausgeprägten Aerosolgradienten, wie sie z.B. an der Obergrenze der planetaren Grenzschicht zu erwarten sind. Die Auflösung beträgt 370 m vertikal mit einem zeitlichen Mittel von 21 s horizontal, was in etwa 1,75 km entspricht. Die gemessenen Ozonwerte schwanken zwischen 50 und 85 nmol/mol. Die Änderung der Flughöhe resultiert aus den für verschiedene Flugrichtungen (West - Ost) vorgeschriebenen, unterschiedlichen Flugflächen (Flugfläche (FL) 55, 75, 95 bei einem Kurs von 0° bis 179° und FL 45, 65, 85 und 105 von 180° bis 360°).

Deutlich ist die stark erhöhte Ozonkonzentration über München und in der Region um Augsburg zu erkennen (Abbildung 7-14 b, 9:30 und 10:30 Uhr UTC), was in Abbildung 7-15 b noch einmal vergrößert dargestellt ist. Diese Beobachtungen stimmen sehr gut mit den Daten des Umweltbundesamtes (Werte aus in-situ Messungen in Bodennähe) überein (Abbildung 7-15), die zu dieser Zeit (12:00 Uhr MEZ) Werte von 60 bis 90 nmol/mol gemessen hatten.

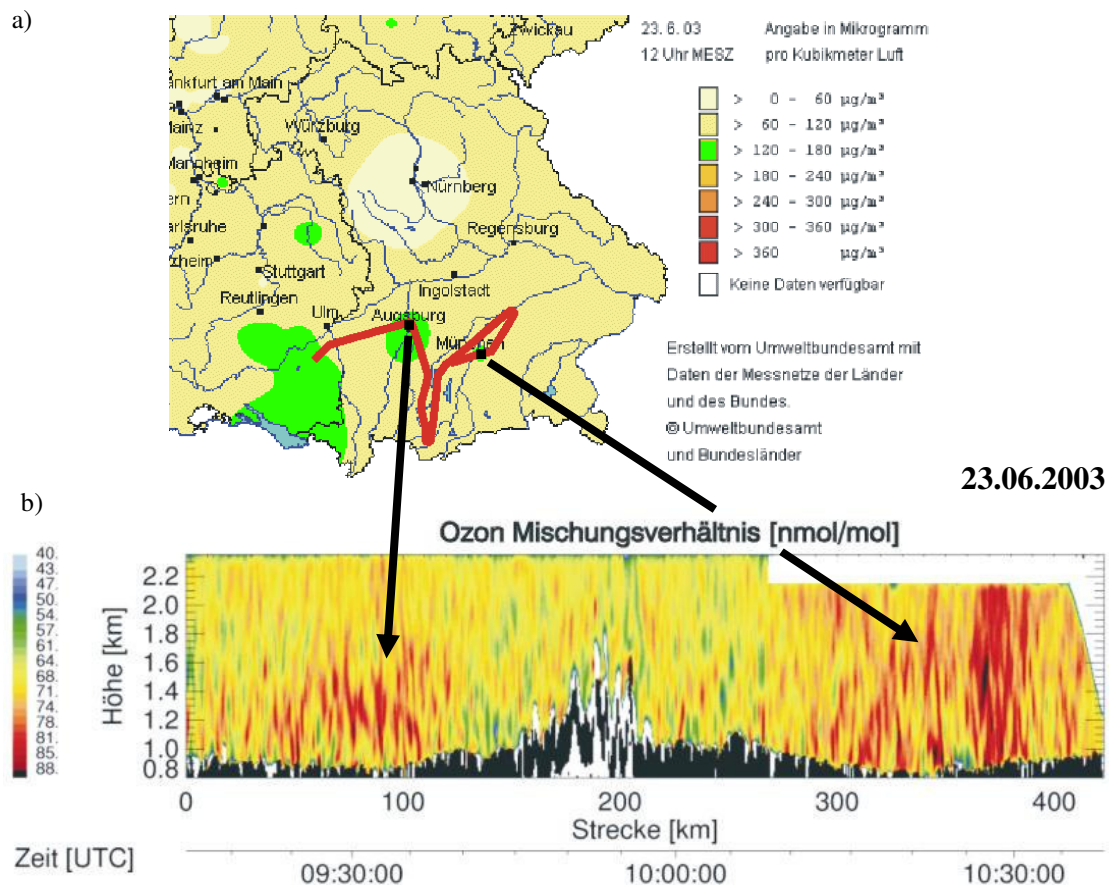


Abbildung 7-15: Ausschnitt der Flugroute vom 23.06.2003 (1. Flug) von 11:15-12:40 Uhr MEZ. Im Hintergrund die Ozonmessung (in-situ) des Umweltbundesamtes ( $2 \mu\text{g}/\text{m}^3 \approx 1 \text{ nmol}/\text{mol}$ ) von 12:00 Uhr MEZ mit deutlich erhöhter Ozonkonzentration im Bereich um Augsburg und München, welche auch in den DIAL-Daten wieder zu finden sind. Die vertikale Auflösung beträgt 370 m und horizontal 1,75 km.

## 7.4 Vergleichsmessungen

Wie bereits erwähnt, diente die zweite Flugmesskampagne hauptsächlich der Validation des Systems. Dabei wurden die Flüge mit Messungen anderer, bereits anerkannter und verifizierter Systeme koordiniert. Zum einen war dies ein Sondenaufstieg einer Brewer-Mast Ozonsonde vom Meteorologischen Observatorium Hohenpeißenberg und zum anderen mit dem Ozon-Boden-Lidar des Forschungszentrums Karlsruhe (FZK, IMK-IFU) in Garmisch.

Für die Verifizierung mit dem Boden-Lidar gibt es nur eine mündliche Mitteilung, nach der die vom TropOLEX gemessenen Werte sehr ähnlich denen des IMK-IFU seien [pers. Mitteilung Dr. Trickl]. Noch bevor die Daten am IMK-IFU ausgewertet werden konnten, gingen dort sämtliche Messdaten für Juni 2003 durch einen technischen Defekt verloren.

Beim Vergleich mit den Messdaten der Ozonsonde des Hohenpeißenbergs, stellte sich heraus, dass die von der Sonde gemessenen Werte erheblich von denen des

TropOLEX abweichen. Gleichzeitig liegt aber auch eine Differenz von über 20 nmol/mol der Sondenwerte zu den orts- und zeitgleich gemessenen Werten der Bodenstation vor. Diese Differenz ist nach Aussage des DWD auf eine Kontamination beim Start der Sonde zurückzuführen. Dies ist keine Seltenheit und die Sonde reinigt sich innerhalb weniger Minuten selbst, so dass die Werte in der oberen Troposphäre und darüber hinaus wieder korrekt sind.

Wenn von einem konstanten Offset der Sonde in Höhe der Differenz zu den Messwerten der Bodenstation ausgegangen wird, so würden das Höhenprofile der Sonde und das des TropOLEX sehr gut übereinstimmen. Allerdings liegt eine zeitliche Differenz von 1 ½ Stunden zwischen Sondenstart und Überflug und die Dekontamination der Sonde ist ein kontinuierlicher Prozess. Daher ist die Annahme eines konstanten Offsets nicht zulässig und somit auch kein Vergleich der DIAL-Daten zu den Sondendaten möglich.

Aus den angeführten Gründen bleibt für die Validation als einzige Möglichkeit der Vergleich mit den Messdaten von überflogenen Bodenstationen. Aber auch hier ist ein direkter Vergleich nur eingeschränkt möglich, da das DIAL-Verfahren einen bestimmten minimalen Integrationsbereich benötigt.

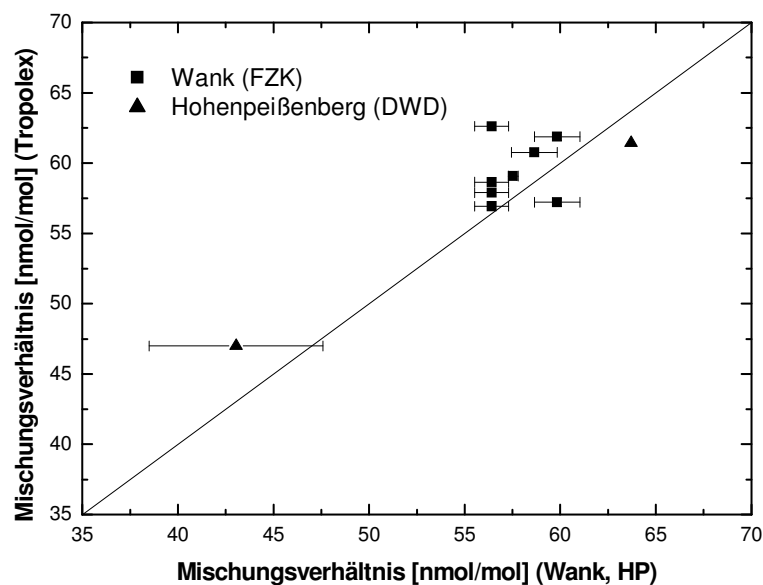
Das vom Boden reflektierte Signal ist sehr viel stärker als das noch aus der Atmosphäre zurückgestreute Signal. Wenn der Boden also innerhalb des Abschnittes liegt, über welchen gemittelt wird, so ist das Signal nicht mehr sinnvoll auszuwerten. Um aber dennoch eine Validation durchzuführen, gibt es die Möglichkeit, etwas exponiertere Messstationen (z. B. auf einem Berg), zum Vergleich heranzuziehen.

Die Flugroute der Cessna für den 23. Juni 2003 wurde so geplant, dass auf beiden Flügen mehrfach in der Nähe der Zugspitze gekreist wurde, um eine möglichst gute Übereinstimmung mit dem Ozon Boden-Lidar des IMK-IFU in Garmisch zu erzielen. Dabei führte die Route sehr eng an der benachbart liegenden Bodenmessstationen des IMK-IFU, am Wank, in etwa 1700 m Höhe, vorbei. Der Vergleich der Messdaten des TropOLEX zu den entsprechenden Zeiten und natürlich auf gleicher Höhe, mit den Messwerten der Bodenmessstation am Wank ist in Tabelle 7-2 mit der zugehörigen Grafik in Abbildung 7-16 zu finden. Die in der Tabelle angegebenen Werte der Bodenstation sind halbstündige Mittelwerte und mit Dynamik ist die Variation der Messwerte bezogen auf den vorherigen und den nachfolgenden Wert gemeint. Die Toleranz, bei den Werten des TropOLEX, ist die Standardabweichung vom Mittelwert, da über mehrere Profile gemittelt wurde.



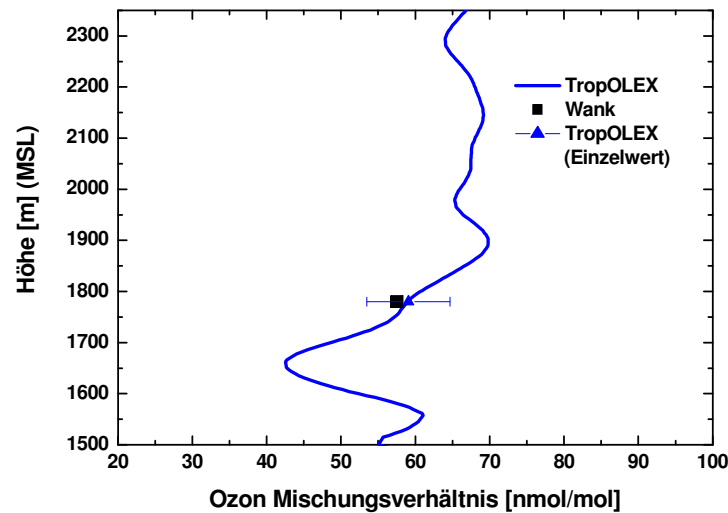
Bodenstation [nmol/mol]	TropOLEX [nmol/mol]	Differenz (TropOLEX – in-situ) [nmol/mol]	Anzahl der gemittelten Profile	Mittlere Entfernung [km]
43,04 ± 4,54 (HP)	46,99 ± 18,74	3,95	--	--
56,41 ± 0,9 (W)	62,62 ± 3,35	6,21	3	1,7
56,41 ± 0,9 (W)	58,64 ± 2,7	2,23	2	4,6
56,41 ± 0,9 (W)	56,93 ± 6,57	0,52	4	4,9
56,41 ± 0,9 (W)	57,90 ± 4,72	1,49	3	4,2
57,54 ± 0,3 (W)	59,07 ± 5,61	1,53	4	1,5
58,65 ± 1,2 (W)	60,76 ± 8,29	2,11	9	1,7
59,84 ± 1,2 (W)	61,87 ± 6,39	2,03	10	0,3
59,84 ± 1,2 (W)	57,21 ± 6,75	-2,63	5	2,5
63,71 (HP)	61,43	-2,28	--	--

**Tabelle 7-2:** Vergleich der Ozonmesswerte der Bodenstation des IMK-IFU am Wank (W) bei Garmisch und des DWD am Hohenpeißenberg (HP) mit den Werten des TropOLEX während zweier Flüge am 23. Juni 2003. Die Variation der Werte der Bodenmessstation beziehen sich auf die 30 Minuten vorher und nachher gemessenen Werte.



**Abbildung 7-16:** Grafische Darstellung der Vergleichsmessung zwischen Wank, HP und TropOLEX

Nahezu alle TropOLEX-Werte in Tabelle 7-2 stimmen im Rahmen der Fehler mit den Bodenwerten überein. Die Standardabweichung der TropOLEX-Messungen gegenüber den Bodenmessungen beträgt 1,5 nmol/mol. Um dieses Ergebnis besser zu verdeutlichen, ist in Abbildung 7-17 ein mit dem DIAL gemessenes Höhenprofil mit dem zugehörigen Messwert der Bodenmessstation am Wank dargestellt.



**Abbildung 7-17:** Vergleich der DIAL-Messung mit der Bodenmessstation des Instituts für Meteorologie und Klimaforschung des Forschungszentrums Karlsruhe (IMK-IFU) am Wank (Garmisch) vom 23. Juni 2003 um 9:55 Uhr UTC. Die blaue Linie ist die DIAL-Messung des TropOLEX, mit dem Dreieck als gemessener Wert mit zugehörigem Fehler in der Höhe der Messstation am Wank (schwarzes Quadrat).

## 8. Fehlerdiskussion

Der Einsatz eines Lidar-Systems ist mehreren Fehlerquellen unterworfen, wobei zwischen statistischen und systematischen Fehler unterschieden werden muss. Im Gegensatz zu den systematischen Fehlern, lassen sich statistische Fehler durch die Mittelung über möglichst viele unabhängige Messungen reduzieren. In diesem Kapitel werden die möglichen Fehlerquellen näher erläutert und untersucht, inwieweit diese die Messung beeinträchtigen.

### 8.1 Systematische Fehler

Die systematischen Fehler liegen hier in

- der korrekten Bestimmung des differentiellen Absorptionsquerschnittes und damit auch in der Genauigkeit der Wellenlängenbestimmung
- dem Temperatureinfluss auf den differentiellen Absorptionsquerschnitt
- dem Einfluss der Querinterferenzen zu anderen Spurenstoffen
- der Auswirkung von Aerosol auf die Messungen und der Einbeziehung in die Auswertung.

#### 8.1.1 Wellenlängengenauigkeit

Für eine DIAL-Messung ist die Kenntnis der genauen Wellenlänge sehr wichtig, da der differentielle Absorptionsquerschnitt bekannt sein muss und dieser über die Wellenlänge zugeordnet wird. Aus diesem Grund wurde die OPO Signalwellenlänge während der Messungen permanent überwacht. Aus der Signalstrahlung des OPO kann direkt die Idlerstrahlung errechnet und daraus mit der bekannten Wellenlänge zur Summenfrequenzmischung die UV-Wellenlänge bestimmt werden.

Wie in Kapitel 5.6 beschrieben, ist der Resonator des OPO nicht signalresonant, d.h. an mehreren Spiegeln tritt Signalstrahlung in einem spektralen Bereich von 730 bis 890 nm aus dem Resonator aus. Im Gegensatz zur Idlerstrahlung oder dem emittierten UV liegt diese in einem Bereich, der eine einfache und genaue Detektion zulässt. Dabei ist die Verschiebung der UV-Strahlung proportional zur Variation der Signalstrahlung, folgt dieser aber wellenlängenabhängig nur mit einem Faktor von

etwa 1/6 bis 1/10 (siehe Gl. 8.1.1). Das bedeutet, dass eine Variation der Signalwellenlänge um 1 nm eine Veränderung der entsprechenden UV-Strahlung von maximal nur 0,17 nm zur Folge hat.

$$V_{Pumpe} = V_{Signal} + V_{Idler} \rightarrow V_{Idler} + V_{355} = V_{UV}$$

$$\Delta v_{UV} = g(\lambda) \cdot \Delta v_{Signal} \quad \text{mit} \quad g(\lambda) = [1/6 ; 1/10] \quad 8.1.1$$

Bei dem verwendeten Spektrometer handelt es sich um ein handelsübliches Gitterspektrometer der Firma *OceanOptic.inc* vom Typ HR2000. Das eingebaute CCD-Array ist ein linearer Sony ILX511 Chip mit insgesamt 2048 Pixels, die eine Größe von 14 µm x 200 µm besitzen. Die Einkopplung der zu messenden Strahlung in das Spektrometer erfolgt über eine Glasfaser, wobei der Eintrittsspalt 5 µm beträgt und das Gitter 1200 Linien pro mm besitzt. Der spektrale Messbereich geht bei diesem Gerät von 710 bis 885 nm und die optische Auflösung berechnet sich nach der Formel:

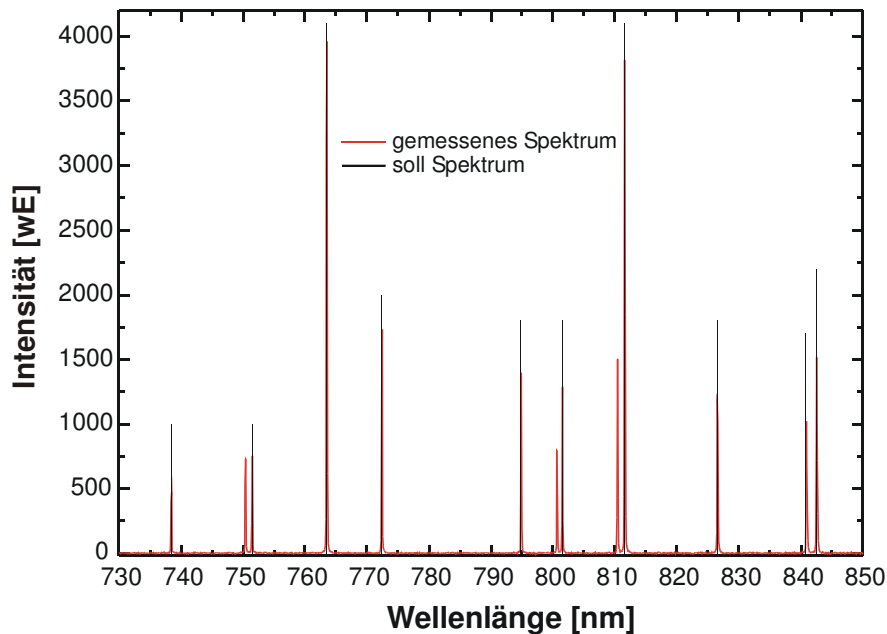
$$\frac{\text{spektraler Bereich}}{\text{Anzahl der Pixel}} \cdot \text{Pixelauflösung} = \text{Auflösung}.$$

Die Pixelauflösung richtet sich dabei nach der Spaltgröße und steigt mit zunehmender Größe. Bei dem verwendeten 5 µm Spalt beträgt sie 1,5. Damit ergibt sich ein theoretisches Auflösungsvermögen für das Spektrometer von

$$\frac{(885 - 710) \text{ nm}}{2048} \cdot 1,5 = 0,13 \text{ nm (FWHM)}.$$

Für die UV-Bestimmung bedeutet dies bei bekannter Linienbreite der dritten Harmonischen des Nd:YAG ein Auflösungsvermögen von besser als  $2,2 \cdot 10^{-2} \text{ nm}$ .

Zur Überprüfung der Absolutgenauigkeit des Gerätes wurde das von uns gemessene Spektrum einer Argon Kalibrierlampe der Firma *LOT* mit den Sollangaben des Herstellers der Lampe verglichen (Abbildung 8-1, Tabelle 8-1).



**Abbildung 8-1: Vergleich der mit dem Spektrometer gemessenen Spektrallinien einer Argon Kalibrierlampe mit den Herstellerangaben (LOT) der Spektrallampe**

Die gemessene durchschnittliche Abweichung zu den Werten der Herstellerfirma liegt bei 0,05 nm; die der Vertriebsfirma bei 0,04 nm, wobei der zeitliche Abstand etwa zwei Jahre beträgt. Die gemessenen Abweichungen betragen weniger als die Hälfte des theoretischen Auflösungsvermögens und sind deshalb zu vernachlässigen. Das bedeutet, dass die während der Messkampagnen gemessenen Signalwellenlängen und daraus errechneten UV-Messwellenlängen sehr zuverlässig bestimmt werden konnten.

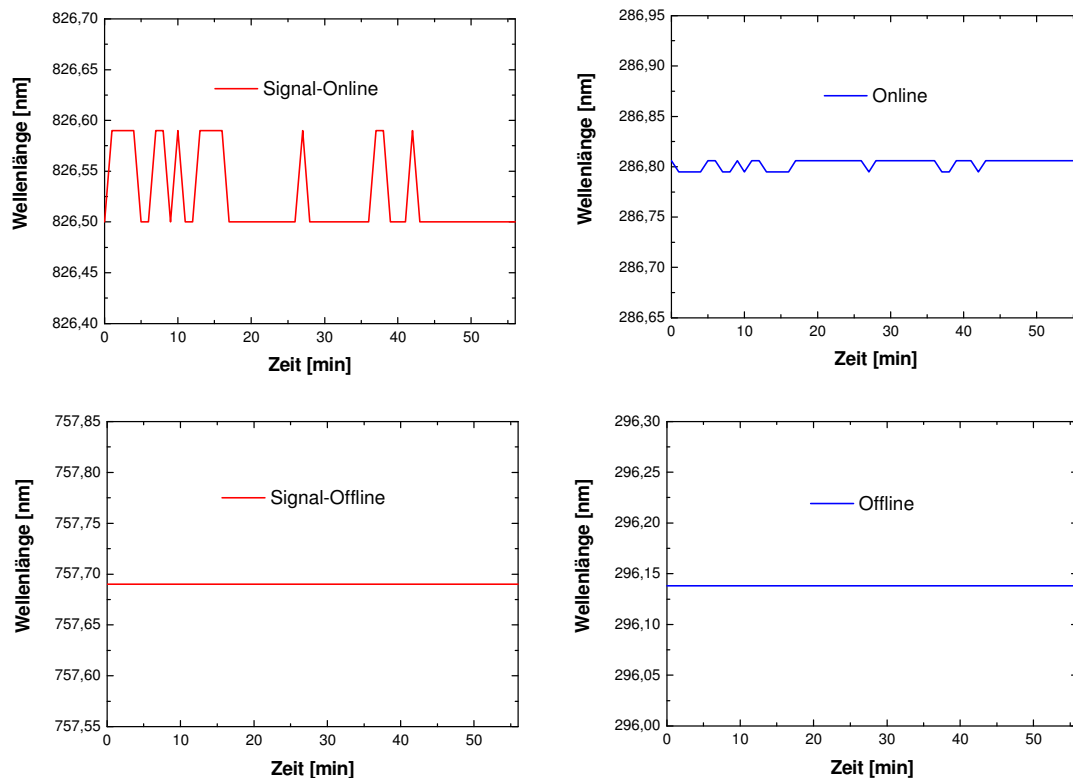
<b>Spektrallampe Soll (LOT) [nm]</b>	<b>Gemessen [nm] (Avantes)</b>	<b>Differenz [nm] (Vertriebsfirma)</b>
738,40 (738,398)	738,41 (738,359)	+0,01 (+0,039)
751,47	751,49	+0,02
763,51 (763,510)	763,57 (763,566)	+0,06 (-0,056)
772,42 (772,421)	772,43 (772,383)	+0,01 (+0,038)
794,82 (794,817)	794,89 (794,796)	+0,07 (+0,021)
801,48 (801,479)	801,54 (801,455)	+0,06 (+0,024)
811,53 (811,531)	811,59 (811,500)	+0,06 (+0,031)
826,45 (826,452)	826,50 (826,499)	+0,05 (-0,047)
840,82	840,89	+0,07
842,46 (842,465)	842,57 (842,486)	+0,11 (-0,021)

**Tabelle 8-1: Angaben des Herstellers der Spektrallampe LOT und der Vertriebsfirma des Spektrometers (Avantes) im Vergleich zu den gemessenen Linien.**

Die Wellenlängen wurden bei allen Ozonmessungen überwacht und gegebenenfalls nachjustiert. Als Toleranz für die Abweichung wurde dabei eine maximale Differenz der Signalstrahlung von einem halben Nanometer zum Sollwert angesetzt. Somit wurde theoretisch eine Genauigkeit der UV-Strahlung von besser 0,08 nm erreicht.

Bei einer Abweichung um 0,1 nm vom Sollwert der UV-Messwellenlängen, beträgt die Abweichung in der errechneten Ozonkonzentration weniger als 1,5 %.

Als Beispiel für die Wellenlängenstabilität sind in Abbildung 8-2 die gemessenen Wellenlängen der Signalstrahlung für On- und Offline vom ersten Flug am 23. Juni 2003 mit den sich daraus ergebenden UV-Wellenlängen aufgetragen.



**Abbildung 8-2: Während des ersten Fluges am 23. Juni 2003 gemessene Signalwellenlängen und daraus errechnete UV-Wellenlängen.**

Die Offlinewellenlänge war so stabil, dass sie über dem aufgezeichneten Zeitraum von 55 Minuten keinerlei Variation zeigt und somit in der grafischen Darstellung nur eine waagerechte Linie ergibt. Da sich das Gerät an der Auflösungsgrenze befindet, variiert die Onlinewellenlänge zwischen 826,5 nm und 826,6 nm. Bei genauerer Betrachtung der einzelnen gemessenen Spektren ist ersichtlich, dass es sich um eine Änderung im Rahmen der Rundungsgenauigkeit handelt. Gleiches gilt damit natürlich auch für die UV-Wellenlänge. Nimmt man die Variation von 0,01 nm im UV als real an, liegt der dadurch hervorgerufene Fehler in der Bestimmung der Ozonkonzentration bei weniger als 0,22 %.

### 8.1.2 Temperatureinfluss

Mit der Temperatur ändern sich auch die wellenlängenabhängigen Absorptionsquerschnitte von Ozon und somit auch die Grundlage der Datenauswertung (siehe Gl. 3.14 bzw. 3.17). Bei den durchgeführten Messungen betrug der Unterschied der Temperatur in Flughöhe und am Boden bis zu 25 °C. Unter der Annahme eines Temperaturunterschiedes von 48°, beträgt die Variation des differentiellen Streuquerschnittes von Ozon  $1,6 \cdot 10^{-20} \text{ cm}^2$  ( $1,395 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2$  bei 298 K mit einer Auflösung von 0,1 nm [Daumont et al. 1992];  $1,379 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2$  bei 250 K mit einer Auflösung von 0,03 nm [Bass A. M.]). Das bedeutet, dass in diesem Fall die gemessene, nicht temperaturkorrigierte Ozonkonzentration, bei einer angenommenen Temperatur von z. B. -23 °C in Flughöhe und 25 °C am Boden, mit einem Fehler von 1,1 % belastet wäre.

### 8.1.3 Querinterferenzen

Die gemessenen Wellenlängen der zweiten und dritten Harmonischen des Nd:YAG liegen bei 532,24 nm und 354,82 nm, womit sich die Fundamentale zu 1064,47 nm ergibt. Die Resonatorlänge des NY 61 beträgt etwa 48 cm, woraus sich ein Modenabstand  $\Delta f = \frac{c}{2L}$  von ca. 313 MHz ergibt. Die Drift des Seedlasers (Continuum SI500) beträgt etwa 100 MHz/h. Die sich aus den gemessenen Wellenlängen ergebenden UV-Wellenlängen, die real zur DIAL-Messung verwendet wurden, sind in Tabelle 8-2 mit den zugehörigen Absorptionskoeffizienten zusammengefasst.

	Wellenlänge [nm]	Absorptionskoeffizienten [ $10^{-18} \text{ cm}^2$ ]		
		O <sub>3</sub>	SO <sub>2</sub>	NO <sub>2</sub>
Online	286,75	2,05	1,05	0,07
Offline	296,09	0,66	1,02	0,10
Differenz	9,34	1,39	0,03	0,03

**Tabelle 8-2: TropOLEX Messwellenlängen mit zugehörigen Absorptionskoeffizienten**

Unter der Annahme, dass Ozon und Schwefeldioxid in gleichen Mengen in der Atmosphäre vorhanden sind, würde sich in der Auswertung durch den SO<sub>2</sub>-Gehalt ein um 2,11 % erhöhter Ozonwert ergeben.

Unter der Annahme einer Abweichung von einer der beiden Messwellenlängen um 0,1 nm zur Sollwellenlänge, bei gleichzeitiger Konstanz der anderen Messwellenlänge, würden Differenzen von bis zu 11 % in der Absorption von SO<sub>2</sub> auftreten. Bedingt durch die Konstruktion können aber nur beide Wellenlängen gemeinsam driften und diese wurden so ausgewählt, dass die differentielle Absorption

von SO<sub>2</sub> sich nur unmerklich ändern und somit die Ozonmessung nicht zusätzlich belasten würde.

Der Einfluss von Stickstoffdioxid NO<sub>2</sub> auf die DIAL-Messung ist eher gering, da die Konzentration von NO<sub>2</sub> in ländlichen Gegenden in der Regel um ein bis zwei Größenordnung unter der von Ozon liegt (1-10 nmol/mol [Uherek 2004], 1 nmol/mol [U. S. Standard Atmosphere 1976] ). Bei einer angenommenen NO<sub>2</sub>-Konzentration von 1/10 der O<sub>3</sub>-Konzentration, liegt die Unsicherheit in der O<sub>3</sub>-Bestimmung bei weniger als 0,3 %.

#### 8.1.4 Aerosoleinfluss

Die Größe der Teilchen in der Atmosphäre ist für Lidar-Messungen insofern wichtig, da die wellenlängenabhängige Rückstreuung nach der Mie-Theorie von der Größe der Partikel abhängig ist.

Im Allgemeinen unterscheidet man zwischen Aerosolen und Molekülen und bezeichnet dabei alle luftgetragenen Teilchen, die keine Moleküle sind, als Aerosole. Der Durchmesser dieser Aerosole liegt in einem Bereich zwischen 1 nm und 10 µm. Je nach Größe werden Aerosole noch weiter nach ihren Radien in verschiedene Moden eingeteilt. Partikel mit einem Durchmesser von ein bis 20 nm und die sog. Aitken-Mode Partikel mit Durchmessern von 20 bis 100 nm, werden in der Literatur häufig zum Nukleations-Mode zusammengefasst, da in diesem Größenbereich die Bildung neuer Partikel meist durch Nukleation geschieht [z.B. Seinfeld 1986]. Größere Partikel mit Durchmessern von 100 bis 1000 nm werden im Akkumulations-Mode zusammengefasst. In dieser Größenordnung sind chemische Transformationen, wie Kondensation von Gasen auf Partikeln die wesentlichen Prozesse beim Wachstum. Teilchen mit einem Radius von mehr als 1 µm werden als sog. Hydrometeoren (z.B. Nebeltröpfchen) bezeichnet. Aufgrund ihrer Masse haben diese aber nur eine sehr begrenzte Verweildauer in der Atmosphäre, da sie sehr schnell sedimentieren. Die hier angedeutete (Tri-) Modalität des Partikelspektrums [Whitby 1978] wurde inzwischen in zahlreichen Messungen bestätigt.

Die Konzentration dieser Partikel in der Atmosphäre ist äußerst inhomogen verteilt und erstreckt sich normalerweise über Partikelzahlen von 10<sup>2</sup> cm<sup>3</sup> bis zu 10<sup>5</sup> cm<sup>3</sup>, je nach örtlicher Gegebenheit, wobei die Konzentration mit der Höhe rasch abnimmt.

Diese Partikel tragen über Streuung und Absorption der solaren und terrestrischen Strahlung zum Strahlungsantrieb und damit auch zum Wettergeschehen und zur Klimabildung bei [Charlson und Heintzenberg 1994]. Darüber hinaus beeinflussen ihre chemischen Reaktionen mit Spurengasen auch deren Transport und Lebensdauer und die Fähigkeit der Atmosphäre, Spurenstoffe durch Oxidation chemisch abzubauen und sich somit selber zu reinigen. So werden beispielsweise Stickoxide, Schwefeldioxid und flüchtige organische Verbindungen (VOC, engl.: volatile organic compounds) zum Teil in neue Partikel umgewandelt oder kondensieren an Partikeln, d.h. sie werden verändert und können so gegebenenfalls z.B. durch Sedimentation wieder aus der Atmosphäre entfernt werden.

Bei DIAL-Messungen von troposphärischem Ozon kann die Aerosolrückstreuung einen großen Einfluss auf die Konzentrationsbestimmung haben, da hier aufgrund der Absorptionscharakteristik von O<sub>3</sub> die Messwellenlängen spektral relativ weit



auseinander liegen. Die Wellenlängendifferenz  $\Delta\lambda$  beträgt bei den bisherigen TropOLEX Messungen nahezu 10 nm. In großen Teilen der Atmosphäre stellt dies kein Problem dar, da die Aerosolgradienten sehr gering und somit auch die Korrekturen nur klein sind. Beim Übergang der planetaren Grenzschicht in die freie Troposphäre ist aber meist ein sehr ausgeprägter, vertikaler Aerosolgradient anzutreffen (vgl. Abbildung 7-3 a).

Der Großteil der Korrekturen fließt über den zweiten Term in der DIAL-Gleichung (Kapitel 3, Gl. 3.14) ein, der aber nur von Bedeutung ist, wenn eine stark inhomogene, vertikale Aerosolverteilung vorliegt. Ein sehr geringer Teil wird noch zusätzlich durch die für die beiden Messwellenlängen unterschiedliche Aerosolextinktion verursacht, die sich im dritten Term niederschlägt. Andere Spurengase, wie  $\text{SO}_2$ , werden dabei vernachlässigt (siehe Kapitel 4). Bei der am häufigsten angewandten Korrekturmethode [Pelon et al. 1982, Browell et al. 1985] wird der Aerosolrückstreuoeffizient durch das Offline-Signal über die Standard-Inversionstechnik ermittelt [Fernald et al. 1972, Klett, 1981, Sasano and Browell 1989]. Entscheidend für den Erfolg dieser Korrektur ist aber die Wahl der Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolrückstreuung  $\beta_{Aer}$ . Üblicherweise wird ein sog. Ångströmgesetz der Art  $\beta_{Aer} \sim \lambda^{-k}$  angenommen, wobei sich bei experimentellen Untersuchungen im sichtbaren Bereich und nahen Infrarot gezeigt hat, dass ein typischer Wert für  $k = -1$  ist [Browell et al. 1985].

Allerdings gibt es bisher im Bereich von 250-320 nm nur sehr wenige Untersuchungen dazu. Diese aber haben gezeigt, dass die häufig angenommene Proportionalität zu  $\lambda^{-1}$  nur für Wellenlängen  $\geq 350$  nm zutreffend ist [Völger et al. 1996].

Für eine detailliertere Betrachtung dieses Bereiches (250-320 nm) muss noch die relative Feuchte der Luft mit in Betracht gezogen werden. Einige Aerosole sind hygroskopisch und bilden somit bei zunehmender Luftfeuchtigkeit eine zunehmend sphärische Oberfläche aus, womit sich auch der Rückstreuoeffizient ändert. Für eine Luftfeuchtigkeit im Bereich um 90 % ist die Wellenlängenabhängigkeit des Aerosolrückstreuoeffizient  $\beta_{Aer}$  nahezu konstant und deshalb am besten durch  $\lambda^0$  charakterisiert. Hingegen ist im Standardfall einer Luftfeuchtigkeit um die 70 % die Abhängigkeit eher proportional zu  $\lambda^{+1}$ .

Bei der Wellenlängenabhängigkeit der Extinktion scheint ein Wert zwischen  $\lambda^{-1}$  und  $\lambda^{-1/2}$  am ehesten angebracht zu sein [Völger et al. 1996]. Im Speziellen heißt das aber auch, dass bei der Annahme einer Wellenlängenabhängigkeit von  $\lambda^{-1}$  der Fehler in der Ozonkonzentration in bestimmten Regionen der Atmosphäre bis zu 100 % betragen kann. Aber auch bei entsprechenden Korrekturen bleibt immer noch eine Unsicherheit, bedingt durch den Wert der Luftfeuchtigkeit, die einen Fehler von bis zu  $\pm 20$  % verursachen kann.

Aus diesem Grund wurde bei der Auswertung der DIAL-Messungen die Rückstreuung der einzelnen UV-Kanäle und später noch des 355 nm-Kanals in Bezug auf eventuell vorhandene Aerosolgradienten untersucht. Bei dem Großteil der durchgeführten Messflüge war der Fluglevel in Höhe der Obergrenze der Grenzschicht oder knapp darunter, weshalb auch so gut wie keine ausgeprägten Aerosolgradienten zu beobachten waren. Werte mit einem sehr starken Aerosolgradienten wären hier aussortiert worden, was aber nicht notwendig war.

Unter der Annahme einer Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolextinktion von  $\lambda^{-1}$  und einer geringen Ozonkonzentration von 30 nmol/mol ergibt sich durch eine Abschätzung über die DIAL-Gleichung ein Fehler bei der Ozonbestimmung durch die Aerosolextinktion von kleiner als 0,4 %. Dabei wurde eine typische Extinktion  $\alpha$  von  $3 \cdot 10^{-4} \text{ m}^{-1}$  ohne starke Gradienten angenommen. Aus diesen Gründen wurde auf eine Aerosolkorrektur bei der Auswertung der TropOLEX-Daten verzichtet.

Fehler	%
Wellenlängenbestimmung	< 1,5
Temperaturdifferenz	< 1,1
Querinterferenz	< 2,4
Aerosolextinktion	< 0,4

**Tabelle 8-3: Abschätzung der maximalen systematischen Fehler**

## 8.2 Statistischer Fehler

Zu den systematischen Fehlern der Ozonmessung, kommt noch ein statistischer Fehler durch das Instrumentenrauschen (z.B. Photomultiplier) hinzu. Um nun zwischen dem Instrumentenrauschen (weißes Rauschen) und den natürlichen Variationen der atmosphärischen  $\text{O}_3$ -Konzentration unterscheiden zu können, wird die Autokorrelationsfunktion herangezogen [Kiemle et al. 1997]. Hierbei wird die Tatsache ausgenutzt, dass im Gegensatz zur räumlichen Verteilung der Ozonkonzentration, die einzelnen Profile der DIAL-Messung völlig unabhängig voneinander sind.

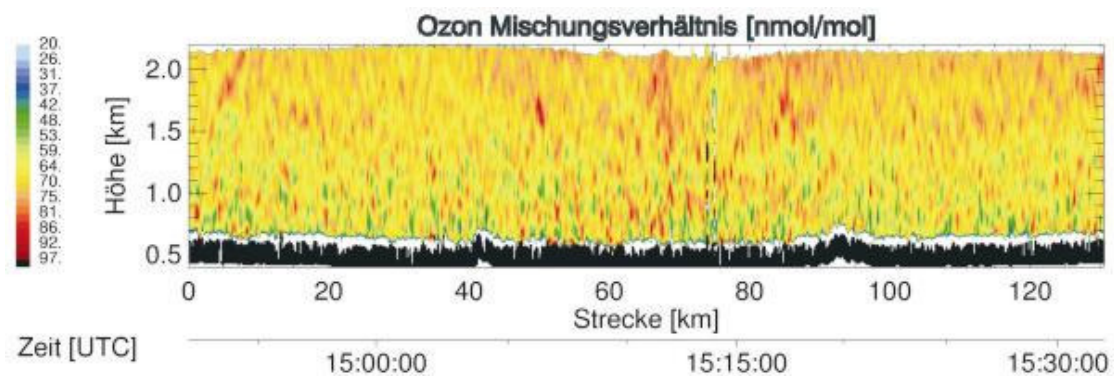
Im Allgemeinen ist die Autokorrelationsfunktion (AKF) wie folgt definiert

$$AKF(f)(y) = \lim_{V \rightarrow \infty} \frac{1}{V} \int_V f(x-y)f(x)dx \quad . \quad 5.3.1$$

Für einen endlichen Datensatz mit  $i = 0$  bis  $N-1$  Elementen, wie er bei einer DIAL-Messung vorliegt, hat die AKF dann folgende Form

$$AKF(f)_j = \frac{1}{N-j} \sum_{i=j}^{N-1} f_{i-j}f_i \quad 0 \leq j < N \quad . \quad 5.3.2$$

Als Beispiel für eine solche Analyse, wurde einen Teil des Fluges vom 28. August 2002 ausgewählt (Abbildung 8-3). Der betrachtete Flugabschnitt hat eine Länge von 130 km und wurde mit einer Auflösung von 223 m vertikal und 163 m (3 s) horizontal aufgenommen.



**Abbildung 8-3:** Ausschnitt von 14:52 – 15:32 Uhr UTC aus den Messdaten vom 28. August 2002 mit einer horizontalen Auflösung von 163 m (3 s) und einer vertikalen Auflösung von 223 m.

Die Analyse des in Abbildung 8-3 dargestellten Fluglegs ergibt u. a. dass die durchschnittliche Ozonkonzentration in einer Höhe von 1,3 km MSL (Abbildung 8-4 a) 68,56 nmol/mol betrug.

In Abbildung 8-4 b ist die berechnete AKF dargestellt. Der herausragende Peak bei Null ist die Summe der natürlichen Varianz  $\sigma_n^2$  und der systembedingten Varianz  $\sigma_s^2$ . Die durchgezogene waagerechte Linie stellt die Grenze zwischen diesen beiden dar. An dieser Stelle liegen noch Datenpunkte, d.h. eine reale durch die Atmosphäre hervorgerufene Fluktuation ist hier vorhanden.

Der relative statistische Fehler über die gesamte Länge in einer Höhe von 1303 m beträgt 7,36 %, was einem absoluten Fehler in der O<sub>3</sub>-Konzentration von 5,04 nmol/mol entspricht. Zu beachten ist hierbei die geringe zeitliche Mittelung von nur 3 s.

In Abbildung 8-4 c wurde dieselbe Analyse für verschiedene Höhen zwischen 900 m und 1600 m durchgeführt und die mittlere Konzentration zusammen mit ihren Fehlern dargestellt. Hier wird noch einmal die in Kapitel 4 beschriebene Zunahme des Fehlers mit steigendem Abstand vom Messinstrument deutlich.

<b>Flug am 28. August 2003 (14:52 – 15:32 Uhr UTC)</b>	
mittlere O <sub>3</sub> -Konzentration in 1303 m MSL	69 nmol/mol
Rel. statistischer Fehler ( $\text{SNR} = \frac{1}{\text{rel. stat. Fehler}}$ )	7,4 % (13,6)
absoluter statistischer Fehler	5 nmol/mol
zurückgelegte Distanz	131 km
durchschnittliche Geschwindigkeit	196 km/h (54,5 m/s)
vertikale Mittelung	223 m
horizontale Mittelung	163 m (3 s)

**Tabelle 8-4: Fehlerbetrachtung der Messung vom 28. August 2002 von 14:52 – 15:32 Uhr UTC.**

Bezogen auf die in der Simulation (Kapitel 4) zu Grunde gelegte zeitliche Mittelung über 30 s ergibt sich in diesem Fall ein Fehler von

$$\text{stat. Error} = \frac{\text{stat. Error}(0)}{\sqrt{\frac{\text{Mittelung}}{\text{Mittelung}(0)}}} = \frac{7,36 \% (1303 \text{ m})}{\sqrt{\frac{30 \text{ s}}{3 \text{ s}}}} = 2,33 \% \quad . \quad 5.3.3$$

Die Entfernung vom Flugzeug beträgt dabei 1700 m. In der Simulation liegt der Fehler bei der gleichen Entfernung bei etwa 2 % (Abbildung 4-4), womit auch eine sehr gute Übereinstimmung der Simulation mit dem Experiment gezeigt wurde.

Mit einem typischen zeitlichen Mittel von 10 s ergibt sich der statistische Fehler zu etwa 4%, wobei bei den anderen Messflügen ein ähnliches Verhalten zu beobachten ist und bei allen überprüften Messungen der statistische Fehler deutlich kleiner als 5 % war.

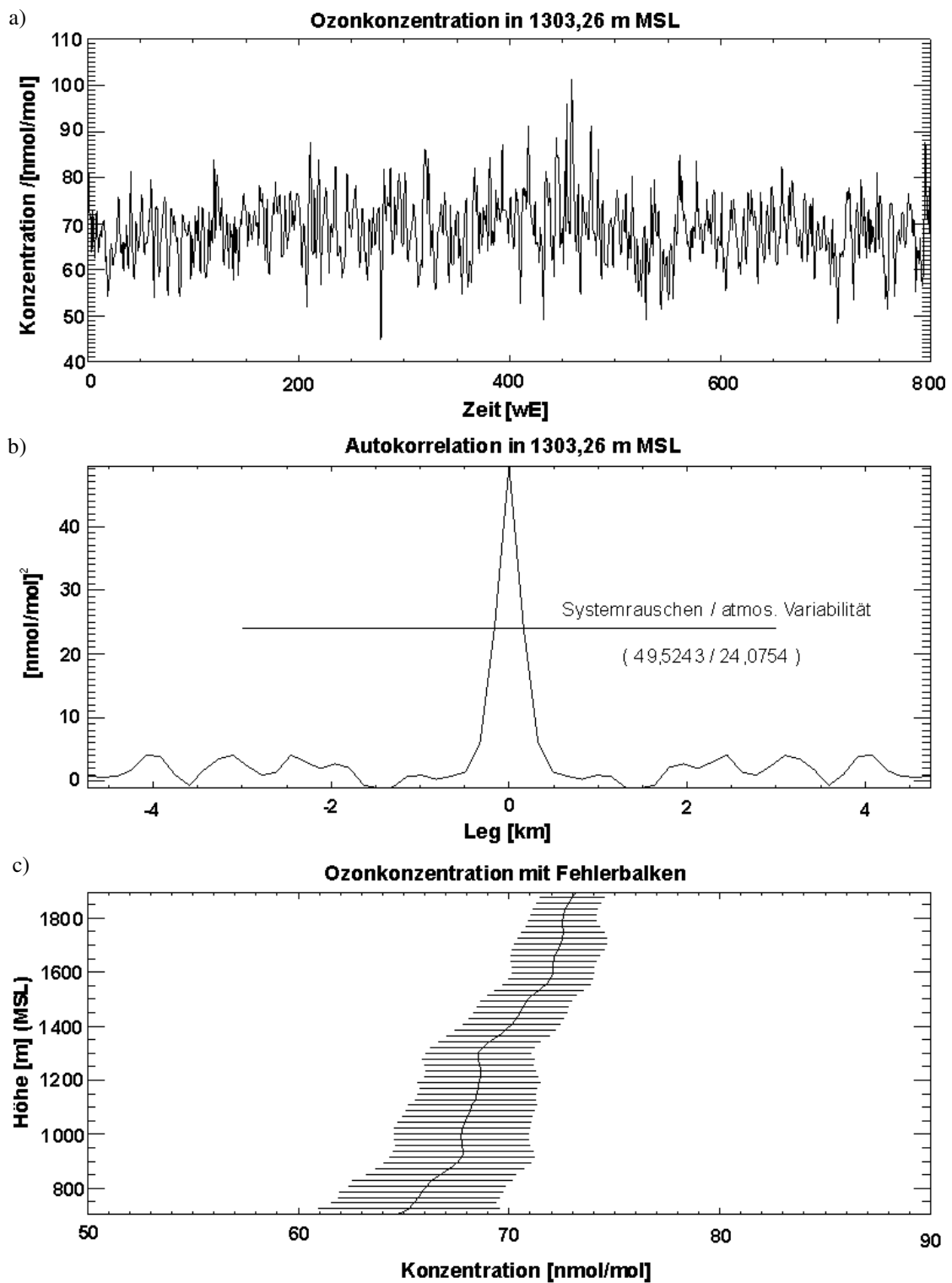


Abbildung 8-4: Fehlerbetrachtung der Messung vom 28. August 2002 von 14:52 – 15:32 Uhr UTC.

### 9. Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein flugzeuggetragenes DIAL-System mit einem optisch parametrischen Oszillator (OPO) als Lasertransmitter entwickelt, mit dem es möglich ist, die räumliche Ozonverteilung in der unteren Troposphäre zu bestimmen. Die räumliche Auflösung beträgt dabei bis zu 220 m vertikal und 600 m horizontal. Das System ist mit einem Stromverbrauch von typischerweise 1100 W und einer Gesamtmasse von 270 kg sehr kompakt, was für die Flugzeugintegration auf einer einmotorigen Cessna Grand Caravan notwendig ist.

Bei DIAL-Messungen werden in rascher Folge zwei Laserpulse mit geringer spektraler Differenz in die Atmosphäre gesandt. Idealerweise interagieren beide bis auf die Absorption durch das zu bestimmende Spurengas auf die gleiche Weise mit der Atmosphäre. Über die Laufzeit des Pulses wird die Entfernung bestimmt und über die unterschiedliche, aber bekannte Absorption bei den beiden Wellenlängen wird die Konzentration des Spurengases berechnet. Für die Messung von troposphärischem Ozon kommt dabei nur der spektrale Bereich unterhalb von etwa 310 nm in Betracht.

Der Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit lag dabei in der Entwicklung eines neuen, geeigneten Lasertransmitters. Im Vorfeld wurden hierzu Computersimulationen durchgeführt, um die erforderlichen Parameter wie Pulsenergie und bestmögliche Wellenlängenkombination zu bestimmen. Auf Basis dieser Berechnungen wurde der Messbereich des Systems auf den spektralen Bereich von 280 bis 300 nm festgelegt und optimiert.

Daraufhin wurde speziell für dieses System eine neue, über den Bereich von 281 bis 300 nm kontinuierlich durchstimbare "all solid state" Laserlichtquelle auf Basis eines KTP OPO mit intracavity Summenfrequenzmischung (SFM) entwickelt. Die Pumpquelle für den OPO ist ein blitzlampengepumpter Nd:YAG Laser mit Injection Seeding und einer Repetitionsrate von 10 Hz. Es konnte gezeigt werden, dass die spektrale Breite im UV kleiner als  $4,5 \cdot 10^{-2}$  nm und die Divergenz kleiner als 0,8 mrad ist. Die durchschnittliche Pulsenergie beträgt 11 mJ, das gemessene Maximum liegt bei etwa 14 mJ. Dieser Lasertransmitter eignet sich insbesondere deswegen, aber auch wegen seiner geringen Abmessungen ( $20 \times 17 \times 10$  cm<sup>3</sup>), seiner Stabilität und seiner vergleichsweise hohen optischen Effizienz von 3,5 % hervorragend für ein flugzeuggetragenes Lidar-System. Die Augensicherheit des Systems ist dabei bereits in einer Entfernung von 40 m vom System gewährleistet.

Auf Basis dieser Lichtquelle wurde ein DIAL-System aufgebaut und als Test für die Eignung als Flugzeugsystem wurden am DLR in Oberpfaffenhofen Messungen vom Boden aus durchgeführt. Anschließend wurde das System in ein einmotoriges Flugzeug vom Typ Cessna 208 Grand Caravan integriert und zwei sehr erfolgreiche Flugzeugkampagnen im Süddeutschen Raum und Österreich durchgeführt. Dabei

konnten sechs Messflüge durchgeführt werden, mit insgesamt über 13 Stunden Flugzeit und mehr als 3200 km zurückgelegter Strecke.

Detektiert wurden dabei die elastische Rückstreuung bei 355 nm zur Aerosolüberwachung, sowie das zurückgestreute UV-Signal bei 287 und 296 nm für die Ozonmessung. Der statistische Fehler der Messungen beträgt dabei in einer Entfernung von 1,5 km unterhalb der Flughöhe etwa 4 %. Der systematische Fehler wurde in einer worst case Annahme mit kleiner 5,5 % berechnet.

Bei diesen Flugzeugmessungen hat das System eindrucksvoll seine Zuverlässigkeit in Bezug auf Ausgangsleistung und Wellenlängenstabilität des OPO unter Beweis gestellt und demonstriert, dass damit großräumige zweidimensionale Schnitte der O<sub>3</sub>-Konzentration durch die Atmosphäre mit einem Gesamtfehler von deutlich unter 10 % gemessen werden können.

Es konnte auch gezeigt werden, dass die während des Fluges gemessenen Ozonkonzentrationen mit den Werten von Bodenmessstationen sehr gut übereinstimmen. Im Rahmen dieser Arbeit konnten aber keine Vergleiche mit Ozonprofilen anderer Systeme gemacht werden.

Das TropOLEX-System würde sich u. a. hervorragend für Untersuchung der Luftqualität von Städten eignen oder zur Untersuchung des Stratosphären-Troposphären-Austausches. Um dieser Herausforderung gerecht zu werden, sollte aber die Repetitionsrate des Laseremitters erhöht werden, um die räumliche Auflösung noch weiter zu erhöhen. Erste Untersuchungen dazu wurden bereits im Rahmen dieser Arbeit mit einem 100 Hz Pumplaser durchgeführt.

Mit geringem Aufwand ist es auch möglich, simultan die O<sub>3</sub>- und SO<sub>2</sub>-Konzentration der Atmosphäre zu bestimmen. Sehr Erfolg versprechend scheint dabei auch das sog. Dual-DIAL-Verfahren zu sein, bei dem die O<sub>3</sub>-Konzentration mit Hilfe von drei spektral unterschiedlichen Wellenlängen bestimmt wird. Der Vorteil liegt dabei in der sehr geringen Sensitivität der Messung auf Aerosoleinflüsse.

Mit dem TropOLEX steht somit ein neues im Vergleich zu den bisher existierenden Systemen erheblich kompakteres Messsystem mit deutlich verbesserter räumlicher Auflösung zur Verfügung, das gezeigt hat, dass es hervorragend für Messungen der troposphärischen Ozonverteilung geeignet ist und auch bei längeren Kampagnen zuverlässig hochaufgelöste Daten liefert. Bedingt durch seine Größe, das niedrige Gewicht und seinen geringen Energieverbrauch ist es für kleine Flugzeugtypen sehr gut geeignet. Hierdurch werden die Betriebskosten gering gehalten und die Mobilität und Verfügbarkeit erhöht. Dadurch wird es zu einer guten Ergänzung für andere Messinstrumente, um aktuelle Fragen bezüglich der Troposphärenforschung klären zu können.

### 10. Summary

Within the scope of this work an airborne differential absorption lidar (DIAL) system based on a tuneable optical parametric oscillator (OPO) as the lidar transmitter was developed to measure the 2-dimensional ozone distribution in the lower troposphere. Its typical resolution is up to 220 m in the vertical and 600 m in the horizontal, respectively. The power consumption is about 1 kW and the overall weight 270 kg. Therefore this is a very compact system what is essential for integration on a small one-engine aircraft like the Cessna 208 Grand Caravan.

The DIAL technique uses rapidly emitted pairs of laser pulses with a small wavelength difference. Both pulses are sent into the atmosphere where they interact the same way with the environment except the absorption of the trace gas of interest. The pulse runtime is used to determine the exact distance while the known different absorption is used to calculate the concentration of the trace gas. The appropriate wavelength range to measure ozone in the troposphere is in the ultraviolet spectral range at wavelengths of less than 310 nm.

The main focus of this thesis was on the development of a new appropriate laser transmitter. Prior to the development computer simulations were performed to determine the required parameters like pulse energy and possible wavelength combinations. These simulations were used to identify and optimise the spectral range for the ozone measurement to the region between 280 and 300 nm.

Based on the results of the simulation a new all solid state laser light source was developed using a KTP OPO with intra cavity sum frequency mixing (SFM). The continuously tuneable spectral width of nearly 20 nm reaches from 281 up to 300 nm and is well adapted to the requirements for ozone DIAL. The pump source for this system is an injection-seeded flashlamp-pumped Nd:YAG laser operating at a repetition rate of 10 Hz. The spectral bandwidth in the UV is less than  $4,5 \cdot 10^{-2}$  nm and the divergence smaller than 0.8 mrad. The average pulse power is about 11 mJ whereas the maximum peak power is about 14 mJ. Because of these advantageous properties in combination with a small size (20x17x10 cm<sup>3</sup>), high mechanical stability, and high optical conversion efficiency of 3.5 % the system is well suited for airborne DIAL-Systems. In addition, eye safety is reached after only 40 m.

Based on this light source a DIAL system named TropOLEX was developed. To prove the reliability for airborne investigations, ground test were carried out first. Subsequently, the system was deployed on DLR's Cessna 208 Grand Caravan. Two field campaigns over the South of Germany and Austria were accomplished. During six flights, comprising of a total flight time of more than 13 h and nearly 1400 km flight path, the performance and reliability were successfully demonstrated.



Because of possible aerosol gradients the elastic backscatter on 355 nm was monitored as well, while for the ozone measurement the backscatter on 287 and 296 nm was recorded. In a distance of about 1.5 km below the aircraft the statistical error of the ozone concentration was determined to be less than 4 %. In a worst case estimation the systematic error was calculated to be less than 5.5 %. The spatial resolution was typically between 600 and 700 m in horizontal and 220 m in vertical direction, depending on aircraft velocity and averaging time.

During these flights the system impressively demonstrated its performance with regard to power stability and wavelength accuracy. Furthermore, it could be demonstrated that two dimensional ozone cross sections throughout the lower troposphere was recorded with an overall error of less than 10 %.

A comparison between in-situ measured ozone near the ground and the aircraft data showed a very good agreement. However, a detailed validation of the TropOLEX system against other ozone profiling instruments was beyond the scope of this work and remains a task for the future.

TropOLEX, for example, is highly qualified for urban air quality studies but will also prove its potential for investigations of stratosphere troposphere exchange. It may be necessary to enhance its resolution by increasing the repetition rate to match the performance for this latter ambitious task. Preliminary investigations were already performed in the context of this work, using a 100 Hz pump laser.

Only little effort is needed to extend the system for simultaneous measurements of O<sub>3</sub> and SO<sub>2</sub> concentrations by using three spectral different wavelengths. Three wavelengths would also be needed for the Dual DIAL technique to measure ozone which is advantageous due to its lower sensitivity to aerosol effects.

With TropOLEX a new lidar system is now at disposal for atmospheric research, being much smaller and showing improved range resolution than most comparable airborne ozone DIAL systems for tropospheric measurements. Therefore this remote sensing system shows great promise for complementing existing airborne instruments to tackle topical scientific problems in tropospheric research.

## 11. Literaturverzeichnis

Aleksandrovsky A. C., Akhmanov S. A., Dyakov V. A., Zehludvec N. I., Pryalkyn V. I.: Kvantovaya Elektron. 12, 1333, 1985 [engl. Übersetzung: Sov. J. Quantum Electron. 15, 885 (1985)]

Alvarez II, R. J., Senff C. J., Hardesty R. M., Parrish D. D., Luke W. T., Watson T. B., Daum P. H., and Gillani N.: Comparisons of Airborne Lidar Measurements of Ozone with Airborne in Situ Measurements during the 1995 Southern Oxidants Study. J. Geophys. Res. 103, 31155-31171, 1998

Ancellet G., Megie G., Pelon J., Capitini R., Renaut D.: Atmos. Environ. 21, 2215, 1987

Ancellet G. and Ravetta F.: A compact airborne lidar for tropospheric ozone (alto): description and field measurements. Appl. Opt., 37, 5509–5521, 1998

Angell, J. K.: Stratospheric temperature change as a function of height and sunspot number during 1972-89 based on rocketsonde and radiosonde data. J. of Clim., 4, 1170-1180, 1991

Anstett G., Göritz G., Kabs D., Urschel R., Wallenstein R., Borsutzky A.: Reduction of the spectral width and beam divergence of a BBO-OPO by using collinear type-II phase matching and back reflection of the pump beam. App. Phys. B, 72(5), 583 – 589, 2001

Armstrong D. A., Bloembergen N., Ducuing J., Pershan P. S.: Interaction between light waves in a nonlinear dielectric. Phys. Rev. 127, 1918, 1962

Bahe, F. C., Schurath U. und Becker K. H.: The Frequency of NO<sub>2</sub> Photolysis at Ground Level, as Recorded by a Continuous Actinometer. Atmos. Environ, 14, 711 - 718, 1980

Bareika B. F., Begishev I. A., Burdulis Sh. A., Gulamov A. A., Erofeev E. A., Piskarska A. S., Sirutkaitis V. A., Usmanov T.: Pisma Zh. Tech. Fiz. 12, 186, 1986 [engl. transl.: Sov. Tech. Phys. Lett. 12, 78, 1986]

Bass A. M., pers. comm. auf UV-Vis-CDROM, 1996

Bergmann L., Schaefer: Lehrbuch der Experimentalphysik. Band 3, Berlin, New York: de Gruyter, 9. Auflage, 1993

Berliner Wetterkarte. Herausgegeben von Berliner Wetterkarte e. V., 2002 & 2003

Bjorkholm J. E.: Some effects of spatially nonuniform pumping in pulsed optical parametric oscillators. IEEE J. Quantum Electron, QE-7, 109, 1971

- Brosnan S. J., Byer R. L.: Optical parametric oscillator threshold and linewidth studies. *IEEE J. of Quantum Electronics*, 1979
- Browell E. V., Carter A. F., Shipley S. T., Allen R. J., Butler C. F., Mayo M. N., Siviter, Jr. J. H., Hall W. M.: *Appl. Opt.* 22, 522, 1983
- Browell E. V., Ismail S. and Shipley S.: Ultraviolet DIAL measurements of O<sub>3</sub> profiles in regions of spatially inhomogeneous aerosols. *Appl. Opt.*, 24(17), 2827–2836, 1985
- Browell E. V.: Differential Absorption Lidar Sensing of Ozone. *Proc. IEEE*, 77, 419–432, 1989
- Browell E. V., et al.: Large-Scale Air Mass Characteristics Observed over the Western Pacific during the Summertime. *J. Geophys. Res.*, 101, 1691–1712, 1996
- Browell E. V., Fenn M. A., Butler C. F., Grant W. B., Clayton M. B., Fishman J., Bachmeier A. S., Anderson B. E., Gregory G. L., Fuelberg H. E., Bradshaw J. D., Sandholm S. T., Blake D. R., Heikes B. G., Sachse G. W., Singh H. B., Talbot R. W.: *J. Geophys. Res.* 10, 24 043, 1996
- Burneika K., Ignatavicius M., Kabelka V., Piskarskas A. and Stabinis A.: Parametric light amplification and oscillation in KDP with mode-locked pump. *IEEE J. Quantum Electron.* QE-8, 574, 1972
- Byer R. L.: Optical parametric oscillators. In *Quantum Electronics: A Treatise*, edited by H. Rabin and C. L. Tang (New York: Academic Press), 587–702, 1975
- Charlson R. J., Heintzenberg J. (Hrsg.): *Aerosol Forcing of Climate*. John Wiley & Sons, 1994
- Chen C., Wu B., Jiang A. and You G.: A new-type ultraviolet SHG crystal -  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>. *Scientia Sinica (Series B)* 28, 235, 1985
- Cheng L. K., Bosenberg W. R. and Tang C. L.: Broadly tuneable optical parametric oscillation in  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>. *Appl. Phys. Lett.* 53(3) 175, 18. Jul. 1988
- Collis R. T. H., and Russel P. B.: Lidar Measurements of Particles and Gases by Elastic Backscattering and Differential Absorption. In E. D. Hinkley (ed): *Laser Monitoring of the Atmosphere*. Springer-Verlag, Germany, 71–151, 1976
- Crutzen P., Andreae M.: Biomass burning in the tropics: Impact on atmospheric chemistry and biogeochemical cycles. *Science* 250, 1669–1677, 1990
- Danielsen E. F.: Stratospheric-tropospheric exchange based upon radioactivity, ozone and potential vorticity. *J. Atmos. Sci.*, 25, 502–518, 1968
- DeMore W. B., Sander S. P., Golden D. M., Molina M. J., Hampson R. F., Kurylo M. J., Howard C. J. und Ravishankara A. R., Kolb C. E.: *Chemical Kinetics and Photochemical Data for Use in Stratospheric Modelling*, NASA, JPL-Publication, 94–26, 1994

- Derwent R. G., Simmonds P. G. und Collins W. J.: Ozone and Carbon Monoxide Measurements at a Remote Maritim Location, Mace Head, Ireland, from 1990-1992. *Atm. Environ.*, 28, 16, 2623-2637, 1994
- Dickerson R. R., Stedman D. H. und Delany A. C.: Direct Measurement of Ozone and Nitrogen Dioxide Photolysis Rates in the Troposphere. *J. Geophys. Res.*, 87, C7, 4933-4946, 1982
- Dietze G.: Zu Ursachen für Unterschiede zwischen mittleren Tagesgängen der Ozonkonzentration in Bodennähe. *Meteorol. Zeitschrift*, N.F.2, 232-238, 1993
- Dmitriev V. G., Gurzadyan G. G., Nikogosyan D. N.: Handbook of Nonlinear Optical Crystals. Springer-Verlag, Berlin, 1991
- Dmitriev V. G., Gurzadyan G. G., Nikogosyan D. N.: Handbook of Nonlinear Optical Crystals. 2<sup>nd</sup> ed., Springer-Verlag, Berlin, 1997
- Dubin M., Hull A. R., Champion K. S. W.: US-Standard Atmosphere, U.S. Government Printing Office (1976)
- Daumont D., Brion J., Charbonnier J., and Malicet J.: Ozone UV Spectroscopy I: Absorption Cross-Section at Room Temperature. *J. Atmos. Chem.*, 15, 145-155, 1992
- Durieux E., Fiorani L., Calpini B., Flamm M., Jacquet L., Bergh H. van den: *Atmos. Environ.* 32, 2141, 1998
- Eckardt R. C., Masuda H., Fan Y. X., Byer R. L.: Absolute and relative nonlinear optical coefficients of KDP, KD\*P,  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, LiIO<sub>3</sub>, MgO:LiNbO<sub>3</sub>, and KTP measured by phase-matched second-harmonic generation. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1990
- Ehhalt D. H., Drummond J. W.: The tropospheric cycle of NO<sub>x</sub>. In: Georgii H. W., Jaeschke W. eds. *Chemistry of the unpolluted and polluted troposphere: Proc. NATO Advanced Study Institute; September-October 1981; Corfu, Greece*. Boston, MA: D. Reidel Publishing CO., 219-251. (NATO Advanced Study Institutes series C - mathematical and physical sciences: v. 96), 1982
- Ehhalt D. H., Rohrer F. und Wahner A.: Sources and Distribution of NO<sub>x</sub> in the Upper Troposphere at Northern Mid-Latitudes. *J. Geophys. Res.*, 97, D4, 3725-3738, 1992
- Ehret G., Klingenberg H. H., Hefter U., Assion A., Fix A., Poberaj G., Berger S., Geiger S., Lü Q.: High peak and average power all-solid-state laser systems for airborne Lidar applications. *LaserOpto* 32, 29-37, 2000
- Eimerl D., Davis L., Velsko S., Graham E. K. and Zalkin A.: Optical, mechanical, and thermal properties of barium borate. *J. Appl. Phys.* 62(5), 1968 (01. Sep. 1987)
- Fan Y. X., Eckardt R. C., Byer R. L., Chen C. and Jiang A. D., *IEEE J. QE*-25, 1196, 1986
- Faust B. C.: Aqueous-Phase Photochemical Reactions in Oxidant Formation, Pollutant Transformations, and Atmospheric Geochemical Cycles. *Environ. Sci. Technol.*, 28, 5, 217A-222A, 1994

- Feister U. und Balzer K.: Surface Ozone and Meteorological Predictors on a Subregional Scale, *Atm. Environ.*, 25A, 9, 1781-1790, 1991
- Feister U.: Measurement of Chemically and Biologically Effective Radiation Reaching the Ground. *J. Atm. Chem.*, 19, 289-315, 1994
- Fernald F. G., Herman B. M. and Reagan J. A.: Determination of aerosol height distributions by lidar. *J. Appl. Meteorol.* 11, 482, 1972
- Fiedler F.: Atmospheric Circulation. In: H. W. Georgii and W. Jaeschke: Chemistry of the Unpolluted and Polluted Troposphere. D. Reidel Publ. Comp. Dordrecht, 1982
- Finnlayson-Pitts B. J. und Pitts Jr. J. N.: Atmospheric Chemistry: Fundamentals and Experimental Techniques. John Wiley & Sons, New York, 1-1098, 1986
- Fischer R., Kulevskii L. A.: Optical parametric oscillators (review), *Sov. J. Quantum Electron.* 7, 135, 1977
- Fix A.: Untersuchung der spektralen Eigenschaften von optisch parametrischen Oszillatoren aus dem optisch nichtlinearen Material Betabariumborat. Dissertation Univ. Kaiserslautern, 1994
- Fix A., Schroeder T., Wallenstein R., Haub J. G., Johnson M. J. and Orr B. J.: Tunable Beta-barium borate optical parametric oscillator: operating characteristics with and without injection seeding. *J. of the Optical Society of America B10*, 1744, 1993
- Fix A., Wirth M., Ehret G.: Optical Parametric Oscillator for UV Lidar Measurements. CLEO/QELS 2000 - Conference, 7-12.5.2000, San Francisco, USA, OSA Technical Digest Series, 107-108, 2000
- Forschungszentrum Karlsruhe (FZK), Institut für Meteorologie und Klimaforschung (IMK), Institut für atmosphärische Umweltforschung (IFU) Kreuzeckbahnstrasse 19, 82467 Garmisch-Partenkirchen, Germany
- Fortezza F., Strocchi V., Giovanelli G., Bonasoni P. und Georgiadis T.: Transport of Photochemical Oxidants along the Northwestern Adriatic Coast. *At. Environ.*, 27A, 15, 2393-2402, 1993
- Frejafon E., Kasparian J., Rambaldi P., Vezin B., Boutou V., Yu J., Ulbricht M., Weidauer D., Ottobriini B., Saeger E. de, Krämer B., Leisner T., Rairoux P., Wöste L., Wolf J.P.: *Eur. Phys. J. D* 4, 231, 1998
- Fritzsche K., Schubert G.: *Laser Optoelektronik* 28, 65, 1996
- Fritzsche K., Schubert G.: *Laser Optoelektronik* 29, 56, 1997
- German Patent DE 198 19 178, United States Patent US 6.219.363 B1
- Giordmaine J. A., Mixing of light beams in crystals, *Physical Review Letters*, 1962
- Godin S., Mégie G., Pelon J.: Systematic Lidar Measurements of the Stratospheric Ozone vertical Distribution. *Geophys. Res. Letters*, Vol 16 Nû 16, 1989
- Goers U.-B.: *Opt. Eng.* 34, 3097, 1995

- Grant W. B. and Hake, Jr. R. D.: Calibrated Remote Measurements of SO<sub>2</sub> and O<sub>3</sub> using Atmospheric Backscatter. Appl. Phys., 46, 3019, 1975
- Harris S. E.: Tunable optical parametric oscillators. Proceedings of the IEEE 57, 2096, 1969
- Hoff R. M., Mickle R. E., Fung C.: Atmos. Environ. 29, 1735, 1995
- Hulst H. C. van de: Light Scattering by small particles. 2nd ed., Dover Publications, New York, 1981
- Jackson J. D.: Classical electrodynamics (dt.), Walter de Gruyter, Berlin, 2. edition, 1982
- Jonson J. E. und Isaksen I. S. A.: Tropospheric Ozone Chemistry. The impact of Cloud Chemistry. J. Atm.Chem., 16, 99-122, 1993
- Kato K., IEEE J. Quantum Electron. 22, 1013, 1986
- Kerker M.: The Scattering of Light and Other Electromagnetic Radiation. New York: Academic Press, 54-59, 1969
- Kessler C.: Gasförmige Salpetrige Säure (HNO<sub>2</sub>) in der Atmosphäre. Dissertation Univ. Köln, 1984
- Kiemle Ch., Ehret G., Giez A., Davis K. J., Lenschow D. H., Oncley S. P.: Estimation of boundary layer humidity fluxes and statistics from airborne differential absorption lidar (DIAL). J. Geophys. Res. 102, 29, 189-29, 203, 1997
- Kins L.: Ergebnisse des bayerischen Klimaforschungsprogramms. Naturwiss. Rdsch., 52, 305-307, 1999
- Klein V. und Werner Ch.: Fernmessung von Luftverunreinigungen mit Lasern und anderen spektroskopischen Verfahren. Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, 1993
- Kleinman L., Lee Y.-N., Sprinston S. R., Nunnermacker L., Zhou X., Brown R., Hallock K., Klotz P., Leahy D., Lee J. H., and Newman L.: Ozone formation at a rural site in the southern United States. J. Geophys. Res., 99, 3469–3482, 1994
- Klett J. D.: Stable analytical inversion solution for processing lidar returns. Appl. Opt. 20, 211, 1981
- Klett J. D.: Lidar inversion with variable backscatter/extinction ratio. Appl. Opt., 24, 1638 – 1643, 1985
- Komhyr W.: Electrochemical concentration sondes for gas analysis. Ann. Geophysique, 25, 203, 1969
- Komine H.: Optical parametric oscillation in a beta-barium borate crystal pumped by an XeCl excimer laser. Optical Letter 13, 643, 1988
- Kondratyev K. Y., Moskalenko N. I.: The role of carbon dioxide and other minor gaseous components and aerosols in the radiation budget. In: Houghton JT (ed): The global climate. Cambridge Univ. Press, Cambridge, 225-233, 1984

Kovalev V. A. and Bristow M. P.: Compensational three-wavelength differential-absorption lidar technique for reducing the influence of differential scattering on ozone-concentration measurements. *Appl. Opt.*, Vol. 35, No. 24, 1996

Kramp F., Buers H. J., Flocke F., Klemp D., Kley D., Pätz H. W., Schmidt T. und Volz-Thomas A.: Determination of OH-Concentrations from the Decay of C5-C8 Hydrocarbons between Freiburg and Schauinsland: Implications on the Budget of Olefins. *Proceedings of EUROTRAC Symposium 1994*, 373-378, 1994

Kroll N. M.: Parametric Amplification in Spatially Extended Media and Application to the Design of Tuneable Oscillators at Optical Frequencies. *Phys. Rev.* 127, 1207, 1962

Lammel G., Perner D.: The atmospheric aerosol as a source of nitrous acid in the polluted atmosphere. *J. Aerosol Sci.*, 19, 1199-1202, 1988

Lavrovskaya O. I., Pavlova N. I., Tarasov A. V.: *Kristallografya* 31, 1145, 1986 [engl. Übers.: *Sov.-Phys. – Crystallogr.* 31, 678 (1986)]

Leighton P. A.: *Photochemistry of Air Pollution*. Academic Press, New York, 1961, zitiert nach Finnlayso-Pitts [1986]

Levine B. F. and Bethea C. G.: *Appl. Phys. Lett.* 20, 272, 1972

Levy H., Mahlman J. D., Moxim W. J. und Liu S. C.: Tropospheric Ozone: The Role of Transport. *J. Geophys. Res.*, 90, 3753, 1985, zitiert nach Finnlayson-Pitts [1986]

Lightfoot P. D., Cox R. A., Crowley J. N., Destriau M., Hayman G. D., Jenkin M. E., Moortgat G. K. und Zabel F.: *Organic Peroxy Radicals - Kinetics, Spectroscopy und Tropospheric Chemistry*. Commission of the European Communities: Air pollution Research Report 40, 1-157, 1993

Lunchev V. A., Magnitskii S. A., Malakhova V. I., Tarasevich A. P., Tunkin V. G. and Yakubovich S. D.: Narrow-band picosecond parametric oscillator with injection of frequency-tuneable semiconductor laser radiation. *Sov. Quantum Electron.* 15, 264, 1985

Maiman, T.H.: *Nature*, 187, 493, 1960

Maker P. D., Terhune R. W., Nisenoff M., Savage C. M.: Effects of dispersion and focusing on the production of optical harmonics. *Physical Review Letters*, 1962

Measures R. M.: *Laser remote sensing: Fundamentals and Applications*. John Wiley & Sons, New York, 1984

Mégie G., Ancellet G., Pelon J.: Lidar measurements of ozone vertical profiles. *Appl. Opt.*, 24, 3454-3453, 1985

Middleton W. E. and Spilhaus A.: *Meteorological Instrumentation*. 3rd ed., Univ. of Toronto Press, 286, 1953

Milton M. J. T., Ancellet G., Apituley A., Bösenberg J., Carnuth W., Castagnoli F., Trickl T., Edner H., Stefanutti L., Schaberl T., Sunesson A., Weitkamp C.: *Appl. Phys. B* 66, 105, 1998

- Molero F., Jacque F.: Opt. Mater. 13, 167, 1999
- Nakatani H., Bosenberg W. R., Cheng L. K. and Tang C. L.: Laser-induced damage in beta-barium metaborate. Appl. Phys. Lett. 53(26), 2587, 26. Dec. 1988
- Neu U., Künzle T. und Wanner H.: On the Relation between Ozone Storage in the Residual Layer and Daily Variations in Near-Surface Concentration - A Case Study. Boundary-Layer-Meteorology, 69, 221-247, 1994
- Oberreuter A.: Intrusion stratosphärischen Ozons in die Troposphäre durch Tropopausenfaltungen und Kaltlufttropfen. In: Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln. Heft 87, ISSN 0069-5882, 1992
- Olszyna K. J., Bailey E. M., Simonaitis R. and Meagher J. F.: O<sub>3</sub> and NO<sub>y</sub> relationships at a rural site. J. Geophys. Res.-Atmospheres, 99 (D7), 14557-14563, 1994
- Österreichisches Umweltbundesamtes, [www.umweltbundesamt.at](http://www.umweltbundesamt.at), Umweltbundesamt GmbH, Wien
- Papayannis A., Ancellet G., Pelon J. and Mégie G.: Multiwavelength Lidar for ozone measurements in the troposphere and lower stratosphere. Appl. Opt., 29, 467-476, 1990
- Pelon J., Megie G.: Nature 299, 137, 1982
- Pelon J. and Megie G.: Ozone monitoring in the troposphere and lower stratosphere: evaluation and operation of ground based lidar station. J. Geophys. Res. 87, C7, 4947-4956, 1982
- Platt U.: The Origin of Nitrous and Nitric Acid in the Atmosphere. NATO ASI Series, 6, Chemistry of Multiphase Atmospheric Systems ed. by W. Jaeschke, Springer-Verlag Berlin, 299-319, 1986
- Proffitt M. H., Langford A. O.: J. Atmos. Sci. 56, 319, 1999
- Rambaldi P., Douard M., Wolf J.-P.: Appl. Phys. B 61, 117 (1995)
- Rheinischen Instituts für Umweltforschung (RIU) an der Universität zu Köln
- Roedel W.: Physik unserer Umwelt: Die Atmosphäre. Springer Verlag, Berlin, 2000
- Russel J.: The Halogen Occultation Experiment. J. Geophys. Res., 98, 10777-10798, 1993
- Sasano Y. and Browell E. V.: Light scattering characteristics of various aerosol types derived from multiple wavelength lidar observations. Appl. Opt. 28, 1670-1679, 1989
- Schneider U. und Georgii H.-W.: Kurzfristige Änderungen der Ozonkonzentration beim Durchzug einer Kaltfront am 22. November 1989. Meteorolog. Zeitschrift, Neue Folge 2, Heft 2, 84-90, 1993
- Schneider W., Moortgat G. K., Tyndall G.S., and Burrows J.P., (UV-Vis Daten, CDROM), MPI Mainz, Germany, 1986



- Scotland R.M.: J. Appl. Meteorol. 13, 71, 1974
- SNLO, nonlinear optics code available from A. V. Smith, Sandia National Laboratories, Albuquerque, NM 87185-1423
- Stull R. B.: An Introduction to Boundary Layer Meteorology. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, 1988
- Seinfeld J. H.: Atmospheric Chemistry and Physics of Air Pollution. John Wiley & Sons, New York, 1-738, 1986
- Sillman S., Samson P. J. und Masters J. M.: Ozone Production in Urban Plumes Transported over Water: Photochemical Model and Case Studies in the Northeastern and Midwestern United States. J. Geophys. Res., 89, D7, 12687-12699, 1993
- Smith K. A., Robertson G. P. und Melillo J. M.: Exchange of Trace Gases between the Terrestrial Biosphere and the Atmosphere in the Midlatitudes. In Prinn R.G.: Global Atmospheric Biospheric Chemistry. New York, 179-203, 1994
- Staehelin J. and Hoigné J.: Decomposition of Ozone in water: Rate of Initiation by Hydroxide ion and Hydrogen Peroxide. Env. Science and Technology 16, 676-680, 1982
- Stocker D. W., Stedman D. H., Zeller K. F., Massman W. J. und Fox D. G.: Fluxes of Nitrogen Oxides and Ozone Measured by Eddy Correlation over a Shortgrass Prairie. J. Geophys. Res, 98, D7, 12619-12630, 1993
- U. S. Standard Atmosphere 1976. Washington, D.C., 1976
- Uchino O., Maeda M., Kohno J., Shibata T., Nagasawa C., Hirono M.: Observation of stratospheric Ozone layer by XeCl Laser radar. App. Phys. Lett., 33, 807-809, 1978
- Uherek E., MPI for Chemistry, Mainz, 2004
- Umweltbundesamtes Berlin, [www.umweltbundesamt.de](http://www.umweltbundesamt.de)
- Urschel R., Universität Kaiserslautern, 1991 -1995
- VDI-Richtlinie, VDI 4210 Blatt 1: Fernmessverfahren - Messungen in der Atmosphäre nach dem LIDAR-Prinzip - Messen gasförmiger Luftverunreinigungen mit dem DAS-LIDAR. Düsseldorf, 1997
- Vandaele A. C., Simon P. C., Guillemot J. M., Carleer M., Colin R.: J. Geophys. Res. 99, 25 599, 1994
- Völger P., Bösenberg J. and Schult I.: Scattering Properties of Selected Model Aerosols Calculated at UV-Wavelengths: Implications for DIAL Measurements of Tropospheric Contr. Atm. Physics, 69, 177-187, 1996
- Volz A. und Kley D.: Evaluation of the Montsouris series of ozone measurements made in the nineteenth century. Nature 332, 240-242, 1988
- Volz A., Geiss H., McKeen S. and Kley D.: Correlation of Ozone and solar radiation at Montsouris and Hohenpeißenberg: Indications for photochemical influence. In: Ozone in the Atmosphere. 447-450, Deepak Publ., Hampton, Virginia, USA, 1989

- Wallinder E., Edner H., Ragnarson P., Svanberg S.: Phys. Sci. 55, 714, 1997
- Wayne R. P.: Chemistry of the Atmospheres. 2nd Ed., Clarendon Press, Oxford, 1-447, 1991
- Weitkamp C., Thomsen O., Bisling P.: Laser Optoelektronik 24, 46, 1992
- Whitby K. T.: The Physical Characteristics of Sulfur Aerosols. Atm. Environ. 12, 135 - 159, 1978
- Yariv A., Yeh P.: Optical waves in crystal, Wiley, 1984
- Yariv A.: Optical Electronics. 4<sup>th</sup> edition, Saunders College Publishing, 1991
- Zetzsch C. and Behnke W.: Heterogeneous Reactions of Chlorine Compounds. NATO ASI Series, 17, Springer Verlag, 291-305, 1993
- Zuev V. E.: Laser-Light Transmission through the Atmosphere. In: Topics in Applied Physics, vol. 14, Laser Monitoring of the Atmosphere, E. D. Hinkley (ed), New York: Springer-Verlag, 29-67, 1976
- Zumsteg F. C., Bierlein J. D. and Gier T. E.: J. Appl. Phys. 47 (11) 4980 - 4985, 1976
- Zumsteg F. C.: Laser Focus 14 (7), 18, 1978
- Zwozdziak J., Zwozdziak A., Sowka L., Ernst K., Stacewicz T., Szymanski A., Chudzynski S., Czyzewski A., Skubiszak W., Stelmaszczyk K.: Atmos. Res. 58, 55, 2001

## 12. Danksagung

Ich möchte mich bei allen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben!

Bei Prof. Dr. Alois Seilmeier für die Übernahme der Doktor-Vaterschaft, die Betreuung und seine wohlwollende Durchsicht des Manuskriptes.

Ebenso bei Prof. Dr. Ulrich Schumann für die Begutachtung der Arbeit und die Aufnahme an sein Institut für Physik der Atmosphäre des DLR.

Gerhard Ehret, Leiter der Arbeitsgruppe Lidar, danke ich für die Unterstützung und die Möglichkeit diese Arbeit in seiner Gruppe durchzuführen.

Mein besonderer Dank gilt Andreas Fix für seine kompetente fachliche Begleitung meiner Arbeit.

Bedanken möchte ich mich auch bei den anderen Mitgliedern der Lidar-Gruppe Christoph Kiemle, Martin Wirth, Georg Simmet, Christiane Hönig, Gorazd Poberaj, Harald Flentje, Axel Amediek, Helmut Löffler, Christoph Grad und Christian Lemmerz für die vielen fruchtbaren Diskussionen, Anregungen, ihre Unterstützung und die mehr als kollegiale Zusammenarbeit.

Gleiches gilt für Peter Mahnke, der allzeit gerne bereit war zu helfen.

Ganz herzlich möchte ich mich bei Gaby Rossmeier bedanken, die allzeit um das Wohlergehen der Mitglieder der Lidargruppe besorgt war und durch ihren Einsatz somit täglich aufs Neue für ein sehr angenehmes Arbeitsklima sorgte.

Beim Flugbetrieb für die tatkräftige Unterstützung rund um die Kampagnen. Und besonders bei Katrin Witte, da ohne sie das System wohl bis heute keine Flugzulassung hätte. Hans Krafczyk und Alfons Mutzl aus der IPA Werkstatt für ihren Einsatz und ihre kreativen Vorschläge bei der Umsetzung meiner Skizzen.

Meinen Eltern, die mich all die Jahre unterstützten und ermunterten.